



# Etude des phénomènes d'endommagement laser dans les composants optiques

Jean-Yves Natoli

## ► To cite this version:

Jean-Yves Natoli. Etude des phénomènes d'endommagement laser dans les composants optiques. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2003. tel-00082588

**HAL Id: tel-00082588**

**<https://theses.hal.science/tel-00082588>**

Submitted on 28 Jun 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

**Université de Droit d'Economie et des Sciences d'Aix Marseille  
Faculté des Sciences et Techniques de Saint Jérôme**

Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille

**DOSSIER DE TRAVAUX**

Présenté par

**Jean-Yves Natoli**

Pour obtenir une

**HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES**

**Etude des phénomènes d'endommagement laser dans  
les composants optiques**

Soutenance le 12 Novembre 2003 devant la commission d'examen :

Rapporteurs :

MM. C. BOCCARA  
P. CHAVEL  
N. KAISER

Examineurs :

MM. C. AMRA  
C. BOCCARA  
P. CHAVEL  
M. COMMANDRE  
N. KAISER  
S. PAPERNOV

# Sommaire

<b>Introduction</b>	<b>5</b>
<b>Préambule</b>	<b>6</b>

## **Partie A : Synthèse des activités scientifiques**

### **I. Activités réalisées et en cours de réalisation**

<b>I.1. Contexte de l'étude</b>	<b>8</b>
<b>I.2. Développement d'un dispositif de mesure de tenue au flux original</b>	
I.2.1. Description du dispositif expérimental	10
I.2.2. Utilisation d'un faisceau laser focalisé avec visualisation in situ	11
I.2.3. Détection fine de l'endommagement : application à l'étude de l'initiation et de la croissance des dommages	12
I.2.4. Contrôle rigoureux des paramètre de tirs : détermination d'une valeur « absolue » de seuil d'endommagement	13
<b>I.3. Mise en évidence de l'existence de nano-centres précurseurs de l'endommagement laser par une étude expérimentale et théorique</b>	
I.3.1. Principe du modèle statistique révélant l'existence de centres précurseurs	15
I.3.2. Résultats obtenus sur différents matériaux en volume et surface	19
I.3.3. Résultats obtenus sur des couches minces optiques	21
<b>I.4. Etude de la couche de passage sur les substrats de silice : diagnostic par endommagement des liquides de polissage</b>	
I.4.1. Contexte de l'étude	22
I.4.2. Mesure de tenue au flux dans les liquides de polissage	24

## **I.5. Développement d'outils de diagnostic non destructifs pour la détection des centres précurseurs de l'endommagement**

I.5.1. Limite de détection des nano-centres	28
I.5.2. Diffusion thermique autour d'un nano-centre	29
I.5.3. Diffusion lumineuse induite sous flux	31
I.5.4. Diffusion angulaire induite sous flux	34
I.5.5. Microscope photothermique couplé au test d'endommagement laser	38

## **I.6. Etude du phénomène d'initiation de l'endommagement sur des échantillons tests de silice contaminés artificiellement**

I.6.1. Cas d'une couche mince de silice non contaminée artificiellement	40
I.6.2. Qualification des échantillons contaminés artificiellement	42
I.6.3. Résultats des irradiations laser sur les échantillons tests	44

## **I.7. Effet des tirs cumulés sur le seuil d'endommagement laser : conditionnement et fragilisation des composants**

I.7.1. Evolution de la tenue au flux du volume de la silice sous irradiations multiples à 1064nm et 355nm	53
I.7.2. Le conditionnement laser	55

## **Conclusion**

## **II. Projets en cours et perspectives**

II.1. Poursuite des travaux en cours	61
II.2. Ouverture vers des outils de diagnostic non optiques	63
II.3 Plate-forme « Photonique de puissance »	65

## **Partie B : Résumé des actions pédagogiques et de recherche**

### **I. Activités d'enseignements à l'ENSPM**

70

<b>II. Activités d'encadrement</b>	<b>72</b>
<b>III. Collaborations et Gestions de contrats</b>	<b>73</b>
<b>IV. Liste des travaux scientifiques</b>	<b>74</b>
<b>V. Responsabilités collectives</b>	<b>78</b>
<b>VI. Activités scientifiques antérieures</b>	<b>79</b>
<b>VII. Publications choisies</b>	

## Introduction

Le document présenté ici n'a pas pour vocation de faire état de l'activité « endommagement laser » de manière exhaustive. L'auteur ne présentera pas par exemple l'état de l'art sur le sujet, ni le développement des résultats théoriques ou le détail de certains aspects expérimentaux. Ces développements sont en effet accessibles dans les thèses soutenues et les différents articles, notamment ceux proposés en fin de document et cités en référence. Il s'agit plutôt ici de donner une vision globale des actions réalisées sur la thématique « endommagement » en décrivant les principes des expériences et approches théoriques mises en œuvre, ainsi que les principaux résultats. Les dernières avancées et projets sur la thématique seront également présentés.

Le document s'articulera de la manière suivante :

- La partie A sera consacrée aux activités de recherches sur l'endommagement réalisées depuis mon arrivée au laboratoire, c'est-à-dire depuis la création de cette thématique.

Dans le premier chapitre de cette partie, on abordera les différents axes forts de l'activité.

Le deuxième chapitre sera consacré aux projets en cours et perspectives sur cette même thématique

- La partie B fait état d'un résumé des actions pédagogique et de recherche, c'est-à-dire les activités d'enseignement, d'encadrement, collaboration, gestion de contrat et liste des travaux.

En annexe, on trouvera les publications choisies ainsi qu'un aperçu sur mes activités de recherche antérieures à l'endommagement.

## Préambule

Il me semble important de situer le contexte dans lequel l'activité d'endommagement laser a pris naissance à l'institut Fresnel, et quelle a pu être ma contribution dans ce projet.

Il faut d'abord savoir qu'avant 1995, année de mon recrutement à l'ENSPM, j'avais effectué une thèse en Science des matériaux au CRMC2-Luminy sur l'épitaxie par jet chimique et la caractérisation de siliciure de fer à vocation optoélectronique en technologie silicium. Je ne pouvais donc être considéré alors comme directement intégrable dans un des projets du laboratoire d'optique alors « LOSCM ».

En termes de recherche il fallait effectivement faire preuve d'ouverture et d'adaptation, plus peut-être que je ne pouvais alors l'imaginer. Après une année passée pour l'essentiel à élaborer l'ensemble des enseignements en électronique numérique de l'ENSPM, Claude Amra, dont l'audace m'étonnent encore aujourd'hui, m'a proposé de relever le double défi d'effectuer ma conversion thématique par la création d'une activité nouvelle au laboratoire : l'endommagement laser. La communauté internationale était alors en pleine effervescence sur ce sujet, qui était notamment portée par deux grands projets : le Mégajoule en France et le NIF aux USA.

J'ai donc rapidement compris qu'il fallait faire preuve d'originalité pour trouver une place dans cette communauté où la communication n'était pas des plus faciles, étant donnés les enjeux économiques. Un autre prix à payer serait aussi l'inertie en termes de production scientifique, qu'un tel développement aller induire. J'avais déjà lors de ma thèse été confronté à la mise en place d'un projet nouveau, mais il n'y avait pas, comme pour l'endommagement laser, de concurrence réelle sur le sujet.

Le dispositif expérimental initial d'endommagement laser était constitué d'une source YAG pulsée à 7ns délivrant 10mJ, pour un diamètre de faisceau de 2mm, et de quelques éléments optiques. Mlle Patricia Volto alors financée par une bourse CIFRE avait décidé d'effectuer sa thèse avec Claude Amra et moi-même dans ce contexte, je salue ici sa contribution dans l'initiation de cette activité.

Les dispositifs de test de tenue au flux laser notamment en France au CEA, aux USA au LLNL et LLE, en Allemagne au LLG et Fraunhofer-Institut...délivraient typiquement quelques joules pour des tailles de faisceaux de sortie supérieures au centimètre.

Pour endommager nos matériaux optiques (silice et couches minces), nous n'avions donc qu'une solution : **focaliser notre faisceau sur quelques dizaines de microns**. Notre

spécificité serait donc **l'étude localisée de l'endommagement**. Comme nous le disons souvent dans l'équipe, « nous avons développé un outil nouveau de diagnostic grâce à notre manque de moyen ». Il faut noter que l'idée de travailler en petit faisceau était alors orthogonale aux besoins et habitudes de la communauté, qui recherchait au contraire à se rapprocher de l'échelle « 1 » de leurs optiques ( $(40\text{cm})^2$ ). La démonstration semblait être faite que l'utilisation d'un faisceau de quelques centimètres était incontournable pour simuler le cas réel.

Notre « petit faisceau » devenait alors pour nous un outil de diagnostic pour tenter de comprendre les phénomènes de claquage, demeurant encore très mal compris. D'autre part les études bibliographiques faites à l'époque nous montraient que la définition du seuil d'endommagement était assujettie à de nombreux paramètres, et que les valeurs données sur différents dispositifs étaient difficilement comparables. Il fallait donc faire un effort particulier en terme de métrologie de l'endommagement pour tendre vers ce que nous appellerons une « valeur absolue » du seuil de claquage. 'Une étude localisée couplée à une métrologie fine', ainsi s'affichait notre premier objectif.

La mise en place d'une telle métrologie intégrant le contrôle précis de tous les paramètres mis en jeu a permis d'obtenir par la suite des résultats significatifs comme par exemple la mise en évidence de l'existence des sites précurseurs nanométriques, la mesure de leur densité, l'étude du pré-endommagement, l'effet des tirs cumulés sur la tenue au flux.... Cependant il a fallu développer cette thématique et bien entendu la financer à l'Institut Fresnel, à contre courant des idées du moment. Je remercie sans retenue Claude Amra pour m'avoir fait confiance et m'avoir apporté son soutien constant dans cette entreprise, ainsi que Mireille Commandre pour ses travaux sur la caractérisation non destructive des défauts et pour son engagement dans l'activité en tant que responsable de l'équipe MAP2.

Cette habilitation à diriger des recherches est en fait pour moi l'occasion de faire un bilan sur ma contribution dans cette activité devenue aujourd'hui un des axes majeurs de recherche dans l'équipe MAP2 de l'Institut Fresnel.



# Partie A : Synthèse des activités scientifiques

## I. Activités réalisées et en cours de réalisation

### I.1. Contexte de l'étude

L'utilisation de lasers de puissance de plus en plus performants conduit à considérer la **tenue au flux des composants optiques** comme une spécification incontournable. Les applications vont de l'optique intégrée, où il faut injecter de la lumière dans de très petites structures, jusqu'aux grands lasers comme ceux utilisés pour le projet Mégajoule en France ou le NIF au USA. On peut également citer le domaine des télécommunications où l'interaction lumière fibre doit être minimisée, et celui de la microélectronique où l'utilisation de l'UV profond pour augmenter l'intégration, conduit à des problèmes de vieillissement.

D'une manière générale, lorsque l'on augmente la densité d'énergie du laser dans un matériau, on peut tout d'abord observer des **effets réversibles** comme des échauffements qui peuvent provoquer des contraintes, des déformations ou bien des effets non linéaires. Si l'on augmente encore la quantité de lumière, il se produit alors des **effets irréversibles plus ou moins importants** tels que : fusion, vaporisation, craquelures, brisures, éclats, cratères, décollements des couches... Ces modifications du matériau sont définies comme **l'endommagement laser**. Ces effets sont mis à profit pour des applications telles que : usinage, perçage, soudure par laser, dépôts de couches par ablation laser, découpe et réparation chirurgicale...

Notre activité qui consiste à comprendre les phénomènes d'endommagement afin de les éviter, où plutôt de faire reculer leur apparition pour des énergies de plus en plus élevées, se situe donc à la limite des effets macroscopiques cités plus haut et des phénomènes réversibles. En effet pour certaines énergies, que l'on qualifiera **de seuil d'endommagement**, on constate expérimentalement l'apparition de phénomènes irréversibles invisibles pour l'expérimentateur, qui constituent **des sites précurseurs de l'endommagement**. Ces sites sont soit présents physiquement avant l'irradiation (nano-impuretés...), soit créés sous flux (centres colorés...).

L'amélioration de la tenue au flux passe donc par une étude des mécanismes d'initiation sur ces sites, mis en jeu lors du processus complexe de claquage, et qui en dépit des efforts consentis depuis plus de trente ans demeurent encore mal compris.

Pour mener cette étude nous avons dans un premier temps consenti un très gros effort sur la métrologie de l'endommagement, en développant un banc de mesure de tenue au flux laser dans le régime nano-seconde à 1064nm( $\omega$ ), 532nm(2 $\omega$ ) et 355nm(3 $\omega$ ), permettant aujourd'hui de se placer au tout premier rang en ce qui concerne la précision des caractérisations.

Dans un second temps nous avons orienté nos études sur la validation expérimentale et théorique de l'existence de centres précurseurs de l'endommagement et de leur caractérisation de manière destructive puis non destructive. L'utilisation d'échantillons modèle contenant des centres absorbants a également été pour nous un moyen d'appréhender à travers des expériences et modélisations associées, les mécanismes d'initiation sur les précurseurs dont la nature exacte reste encore aujourd'hui inconnue.

Les études entreprises jusqu'ici ont plus particulièrement été menées sur les composants pour l'optique (couches minces et substrats de nature différente), mais elles peuvent s'étendre à d'autres matériaux.

## I.2. Développement d'un dispositif de mesure de tenue au flux original

Dans le contexte que nous avons précisé en introduction, de nombreux dispositifs expérimentaux de mesure de tenue au flux laser ont été développés de par le monde. La principale difficulté vient du fait que le seuil d'endommagement est assujéti à de nombreux facteurs comme le critère d'endommagement, la longueur d'onde, la procédure de test, la caractérisation du profil spatial et temporel du faisceau, la durée et le nombre d'irradiations sur un même site, la méthode de mesure de l'énergie et autres paramètres<sup>1-7</sup>.

Ce grand nombre de paramètres induit des difficultés pour faire des comparaisons entre les installations et interdit souvent l'accès à des valeurs fiables pour l'utilisateur<sup>8,3</sup>.

Afin de contourner cette difficulté, nous avons décidé de réaliser un dispositif expérimental de test d'endommagement en optimisant le contrôle de l'ensemble de nos paramètres de tir. Notre ambition était de pouvoir fournir une «**valeur absolue**» du seuil d'endommagement<sup>9,10</sup>.

Il est évident que la notion de valeur « vraie » du seuil est discutable, car dépendante de l'outil d'observation. On peut en effet considérer de manière ultime qu'un matériau est endommagé dès la moindre modification à l'échelle atomique. On s'attachera donc pour éviter tout débat philosophique sur la question, à définir avec précision le critère choisi pour qualifier l'endommagement, ainsi que la pertinence de ce choix dans le contexte de notre étude.

### I.2.1. Description du dispositif expérimental

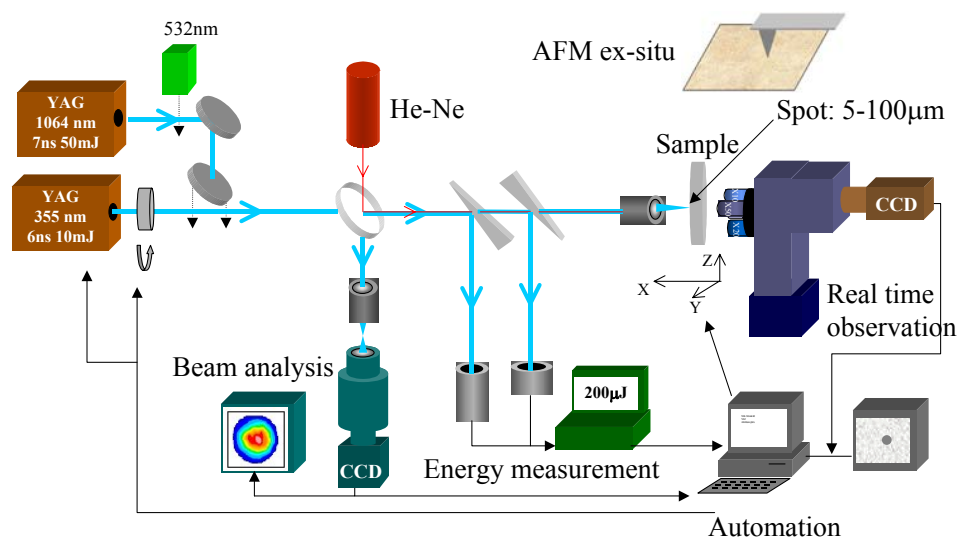


Fig. 1 : Dispositif expérimental

La figure 1 nous montre deux sources laser Nd :YAG impulsional (7ns), ainsi qu'un cristal doubleur, nous donnant accès à trois longueurs d'onde d'irradiation : **355nm, 532nm et 1064nm**. Le faisceau incident est ensuite prélevé trois fois afin d'en mesurer l'énergie et le profil spatial pour chaque tir, en temps réel. Le faisceau est enfin focalisé sur l'échantillon à l'aide d'un objectif à longue distance de travail, adapté à la longueur d'onde d'utilisation. Les tailles minimales de faisceau utilisées sont respectivement de **8µm** et **12µm** pour 355 et 1064nm. Un microscope optique à longue distance de travail placé derrière l'échantillon permet d'imager en temps réel la zone d'impact. L'ensemble du système est piloté par un PC qui enregistre les différents paramètres de tir et qui assure également le déplacement de l'échantillon sur deux axes. Le tracé des courbes de probabilité d'endommagement que l'on définira plus loin est rendu possible et surtout reproductible grâce à ce **dispositif automatisé**. Un **microscope à force atomique (AFM)** ex situ sera couramment utilisé pour analyser la **morphologie des impacts**. De plus un dispositif de photothermie in situ en mode harmonique et pulsé est mis en place pour des études spécifiques. Il n'a pas été représenté ici par souci de clarté dans le schéma.

Le détail précis de la métrologie du dispositif est accessible dans la référence<sup>9</sup> jointe en fin de document ; nous décrirons ici rapidement les caractéristiques originales du dispositif.

### **I.2.2. Utilisation d'un faisceau laser focalisé avec visualisation in situ**

Une des premières spécificités du dispositif expérimental présenté figure 1, est de tester la tenue au flux en utilisant des **faisceaux laser focalisés de petite taille (8µm-50µm à  $1/e^2$ )** et possédant un système de **visualisation in situ**. Grâce à ce dispositif, qui permet l'observation localisée de la zone de test, il a été rapidement possible de discriminer des **sites précurseurs de nature « intrinsèque » et d'autres de nature « extrinsèque »**<sup>11</sup> (fig.12, §I.3). La notion d'« intrinsèque » n'est pas considérée ici au sens strict, elle représente en fait le cas où aucun défaut n'est visible au microscope optique utilisé en différents modes. Un défaut « extrinsèque » est donc détectable lorsque sa taille est voisine d'une fraction de micron. Une étude détaillée du cas « intrinsèque » a permis de valider, comme nous le détaillerons plus loin, l'hypothèse de sites précurseurs de taille nano-métrique. L'utilisation plus fréquente dans la communauté, de faisceaux laser de taille millimétrique (nécessaire aux applications industrielles) freine la compréhension pour deux raisons : d'une part parce qu'il est très difficile expérimentalement d'irradier une zone considérée comme « intrinsèque », et

d'autre part, parce que dans le meilleur des cas les densités de défauts mises en jeu sous le spot sont telles qu'il est impossible d'isoler un défaut.

### I.2.3. Détection fine de l'endommagement : application à l'étude de l'initiation et de la croissance des dommages

Différents moyens sont utilisés pour détecter l'endommagement : la mesure de la diffusion d'un faisceau sonde sur l'impact<sup>12,13</sup>, la détection d'un signal acoustique<sup>14,15</sup>, les variations de transmission<sup>16</sup> et le traitement d'image<sup>17</sup>. Nous avons opté pour la dernière technique, plus difficile à mettre en œuvre et ne pouvant pas supporter de très hautes fréquences de tir, mais permettant de réaliser une **analyse qualitative** du résultat. En effet, les modifications induites sous flux sont observées en temps réel par un microscope optique utilisable en différents modes (champ clair, champ sombre et mode interférentiel). Un système de traitement d'image (soustraction d'image pixel par pixel avant et après tir) réalisé en temps réel, permet de détecter avec une grande précision les tous premiers stades de l'endommagement à des fréquences allant jusqu'à 20Hz (fig.2). Dans notre configuration, en considérant le grossissement du microscope, une variation d'un pixel détectée représente une **modification de surface après irradiation de  $0,16\mu\text{m}^2$** . Cette modification constituera dans notre étude le **critère d'endommagement**. L'initiation étant précisément une information majeure dans la compréhension de l'origine du claquage, la finesse de détection constitue un atout évident. Le système d'imagerie permet également d'éviter les artéfacts de mesure telles que poussières éjectées ou retombées de matières (fig.2).

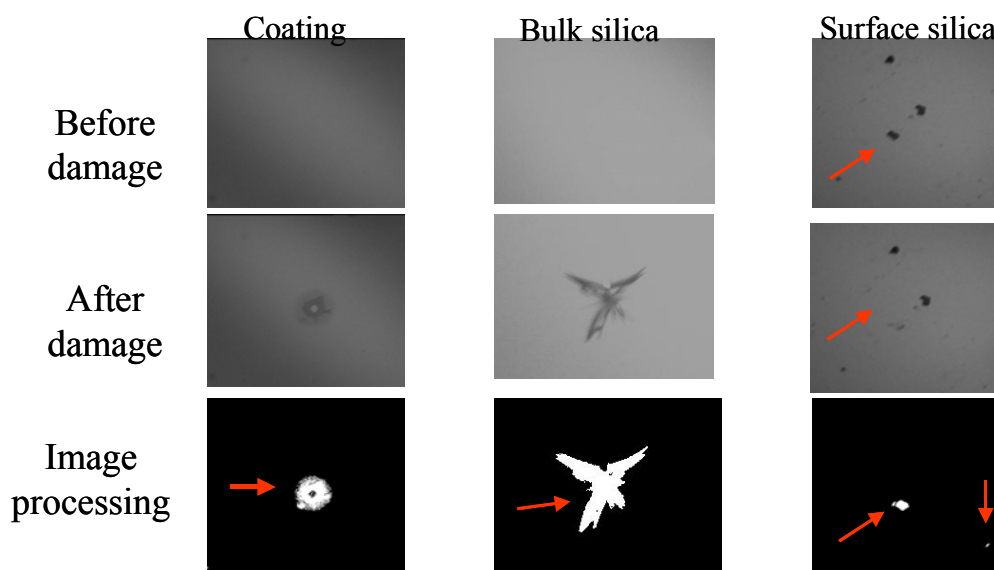
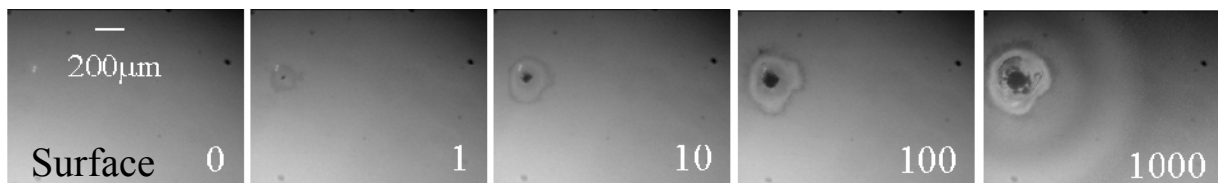


Fig. 2 : Détection de l'endommagement par soustraction d'images

La visualisation in situ pendant le tir permet également de s'intéresser à l'étude de la croissance des dommages, qui présente un intérêt majeur pour les utilisateurs d'optiques subissant des irradiations multiples (fig.3). En effet lorsque la taille du dommage devient critique, les performances optiques du composant sont modifiées, on parle alors de seuil d'endommagement fonctionnel.



**Fig. 3 : Croissance de l'endommagement sous irradiations multiples**

#### **I.2.4. Contrôle rigoureux des paramètres de tirs : détermination d'une valeur « absolue » de seuil d'endommagement**

La précision des mesures de seuil d'endommagement est obtenue d'une part grâce à l'utilisation de faisceaux de petite taille, et d'autre part grâce à un contrôle fin de l'ensemble des paramètres de tir effectué en temps réel : **profil spatial, profil temporel, énergie totale, imagerie de la zone irradiée**<sup>9</sup>. L'ensemble de ces paramètres est stocké jusqu'à des fréquences de tir de 20 Hz, qui est la fréquence maximale de notre laser. Le traitement de l'information à posteriori est donc possible et mis en oeuvre. L'acquisition en temps réel du profil spatial associé à chaque tir nous permet de déterminer **la fluence** (densité d'énergie par unité de surface) en chaque point de l'impact, avec une **résolution spatiale de 0.16μm** (fig.4). Le profil spatial nous donne aussi accès à des valeurs plus communément utilisées telles que la fluence totale, effective, maximale....

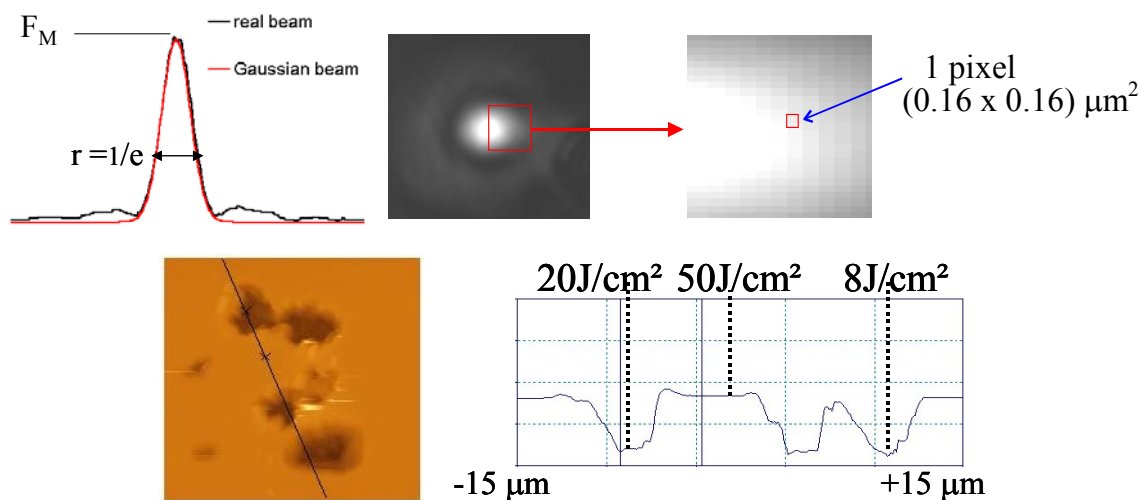
On peut également suivre le **dépointage** du laser en plus de sa stabilité de profil, ce qui s'avère utile lorsque l'on veut réaliser une irradiation localisée comme des études extrinsèques.

Comme on le verra, la détermination du seuil d'endommagement est une mesure statistique, il faut donc irradier un très grand nombre de sites afin d'obtenir **une courbe de probabilité d'endommagement**.

Il est nécessaire ici d'évoquer les différentes procédures de test utilisées pour déterminer la tenue au flux des matériaux. Ces procédures (**1-on-1, S-on-1, R-on-1**) sont détaillées dans une norme<sup>18</sup>. Le mode 1-on-1 que nous utilisons le plus fréquemment dans

nos études consiste à tester  $N$  sites pour une énergie donnée, chaque site étant irradié une seule fois. En répétant la mesure pour différentes énergies, on parvient au tracé d'une courbe de probabilité d'endommagement. La procédure S-on-1 quant à elle, est une procédure qui permet de déterminer le seuil d'endommagement en tir cumulé. En effet, pour une énergie donnée on irradie le matériau jusqu'à l'endommagement. Enfin le mode R-on-1 consiste à appliquer une rampe en énergie sur un site jusqu'au claquage. Chaque site peut dans ce cas fournir une valeur de seuil, d'où l'aspect pratique de la méthode. Néanmoins nous éviterons d'utiliser cette dernière car les résultats sont difficiles à interpréter du fait du plus grand nombre de paramètres intervenant dans l'irradiation.

La nature statistique de ces mesures nous impose de vérifier l'influence de paramètres expérimentaux tels que la distance minimum entre deux tirs, ainsi que l'échantillonnage nécessaire. A titre d'exemple en mode 1-on-1, sur un substrat de silice, il est nécessaire d'irradier 30 sites par énergie pour 30 énergies différentes ; de plus un espacement de 0,5mm entre chaque site irradié doit être respecté afin que la mesure ne soit pas affectée par les irradiations voisines<sup>9</sup>.



**Fig. 4 : Acquisition du profil spatial pour chaque irradiation dans le plan de focalisation. La détermination de la fluence localisée sur un pixel est rendue possible.**

### **I.3. Mise en évidence de l'existence de nano-centres précurseurs de l'endommagement laser par une étude expérimentale et théorique.**

Lorsque l'on effectue une mesure de probabilité d'endommagement en fonction de la densité d'énergie incidente (en mode 1-on-1) on peut observer deux types de comportements suivant le couple 'longueur d'onde / matériau utilisé'. Dans le cas d'une irradiation à 1064nm

et 7ns, une couche métallique se comportera comme un matériau homogène vis à vis de l'irradiation. En effet la forte absorption de la couche métallique interviendra en premier lieu. Ce comportement conduira, pour une densité d'énergie correspondant à la fusion du métal, à l'endommagement de la couche. La courbe de probabilité d'endommagement dans ce cas n'est pas loin d'un échelon (fig. 5a). Une étude détaillée sur l'évolution de la température de la couche mince métallique sous irradiation a été effectuée par déflexion photothermique in situ. Le point de fusion a donc été évalué expérimentalement et correspond au seuil d'endommagement de la couche mince métallique<sup>19</sup>.

En ce qui concerne un matériau diélectrique (tel que la silice) irradié avec la même longueur d'onde, on observe une dispersion significative des valeurs de seuil lors du test (fig. 5b).

Ce phénomène de dispersion a déjà été remarqué lors de tests réalisés avec des faisceaux de quelques dizaines de microns<sup>20,21,22</sup>.

Cette dispersion peut être interprétée comme la signature de l'existence d'une **inhomogénéité dans les matériaux**, ou **sites précurseurs de l'endommagement**. En effet l'utilisation de faisceaux de plus en plus larges fait tendre cette dispersion vers zéro<sup>11</sup>. On peut donc facilement imaginer que la densité de défauts précurseurs sous le faisceau augmentant avec le diamètre du faisceau, la probabilité de claquage tend vers l'unité. Il faut rappeler que nous parlons ici de centres invisibles pour l'expérimentateur, les tests étant effectués dans des zones exemptes de défauts visibles optiquement à travers le microscope.

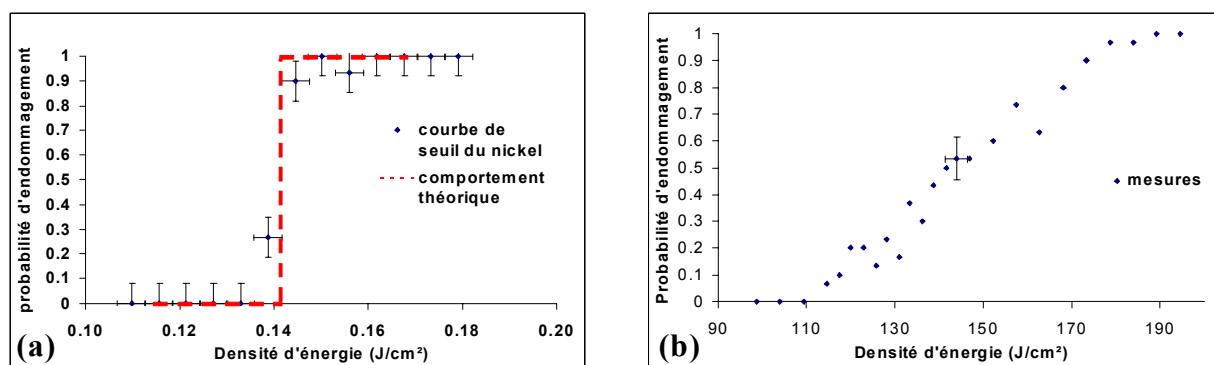


Fig. 5 : Probabilité d'endommagement dans le cas d'un métal(a) et d'un diélectrique(b)

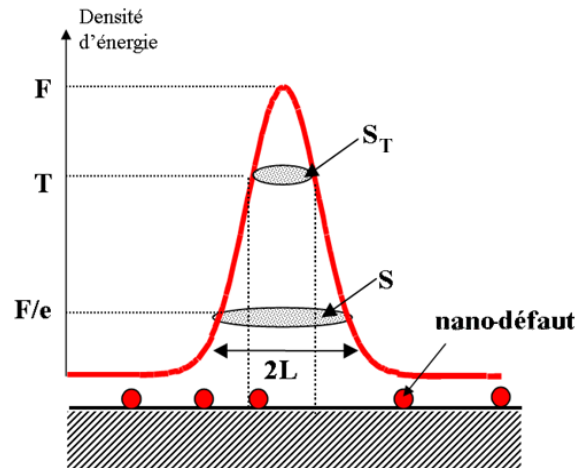
### I.3.1. Principe du modèle statistique révélant l'existence de centres précurseurs

Un modèle statistique basé sur des travaux existant<sup>23,24,25</sup>, mais adapté à nos conditions de test a été développé<sup>11</sup>. Ce modèle a permis à partir des courbes expérimentales de détecter



la présence d'une ou plusieurs sortes de défauts auxquels on affecte un seuil spécifique de claquage. La pente obtenue par l'ajustement de ces courbes au modèle statistique, nous permet de déduire la densité de chaque type de défaut.

Le principe de ce modèle est présenté ci dessous, une version plus détaillée est présentée en référence<sup>11</sup> jointe en fin de document:



**Fig. 6 : Présence de nano-défauts sous le faisceau incident, possédant des seuils de claquage T.**

On souhaite déterminer **la probabilité de présence des nano-centres** sous le faisceau. Pour cela nous supposons un faisceau Gaussien et l'incidence normale. Les défauts sont ponctuels et sont affectés d'une valeur « intrinsèque » de claquage T. On considère également dans nos conditions expérimentales qu'il n'y a pas d'interaction entre les nano-centres sous le flux.

Dans le cas d'un faisceau Gaussien en incidence normale la distribution de l'intensité en surface en fonction de la distance radiale est donnée par l'expression:

$$g(r) = F \exp[-2(r/L)^2] \quad (1)$$

- **Modèle surfacique**

On suppose ici que les sites précurseurs sont uniquement distribués à la surface de l'échantillon.

- Cas d'une sorte de précurseur :

On considère qu'il n'existe une seule sorte de défauts de densité uniforme d, affectée d'une valeur de claquage associée T. Dans ce cas, si la densité d'énergie surfacique (fluence) F est plus petite que le seuil T, la probabilité de claquage est nulle. Pour F supérieur à T, en considérant nos hypothèses initiales, la probabilité est donnée par<sup>11</sup> :

$$p(F)=1-\exp[-dS_T(F)] \quad (2)$$

où  $d$  est la densité surfacique de défauts,  $S_T$  est la partie du spot où la densité d'énergie est supérieure au seuil  $T$  des sites précurseurs : (3)

$$S_T = 0.5 S \ln(F/T) \quad (3)$$

avec  $S = \pi L^2$  la taille de spot défini à  $1/e^2$

La probabilité d'endommagement surfacique pour un type de défaut est donc :

$$p(F) = 1 - \exp\left[-\frac{d}{2} \pi L^2 \ln\left(\frac{F}{T}\right)\right] \quad (4)$$

#### - Cas de plusieurs sortes de précurseurs ( $d_i, T_i$ ) :

Considérons maintenant le cas où il existe plusieurs races de défauts, distribuées avec des densités  $d_i$  et des seuils  $T_i$  sur la surface de l'échantillon. Soient  $M$  races de défauts dont les seuils sont respectivement:  $T_1 < \dots < T_i < \dots < T_M$ .

Sans interaction entre défauts, on obtient:

$T_i < F < T_{i+1} \Rightarrow P(F) = 1 - \exp[-\sum d_i S_i]$  avec  $S_i = S_{T_i}(F) = 0.5 S \ln(F/T_i)$  ce qui conduit à (5)

$$p(F) = 1 - \exp\left[-\sum_i \frac{d_i}{2} \pi L^2 \ln\left(\frac{F}{T_i}\right)\right] \quad (5)$$

Ce résultat se traduit, si les  $T_i$  sont suffisamment différent, par l'apparition de **ruptures de pente** dans le tracé de la probabilité d'endommagement, chaque rupture correspondant à une race de défaut.

#### • **Modèle Volumique**

Les défauts sont maintenant distribués en volume (fig.8) avec une densité uniforme  $d$ . Le raisonnement est analogue à la surface, et il suffit de remplacer la surface  $S_T$  de claquage potentiel par le volume  $V_T(F)$  qui tient compte de la profondeur de champ.

La probabilité est maintenant donnée par (6) :

$$p(F) = 1 - \exp[-d V_T(F)] \quad (6)$$

où  $d$  est la densité de défauts,  $V_T$  est le volume dans lequel l'énergie est supérieure au seuil des défauts.

Pour le matériau massif (substrat) on trouve, avec  $U = \sqrt{\left(\frac{F}{T_0} - 1\right)}$

$$V_T = \frac{4}{3} \pi w_0^2 z_R (U^3/6 + U - \arctan U) \quad (7)$$

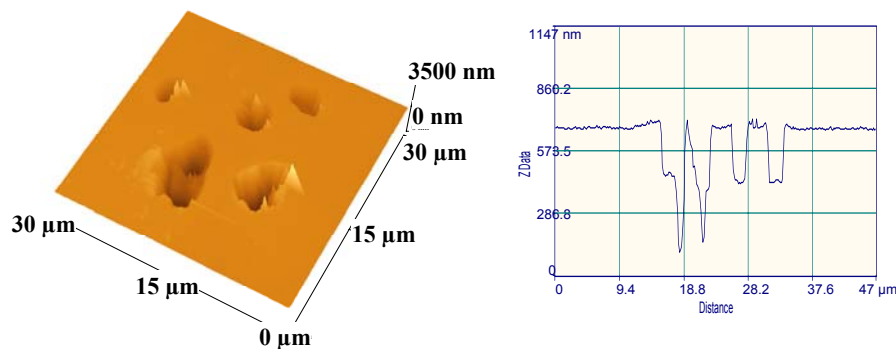
- **Cas d'une couche mince**

Le cas d'une couche mince (fig. 8) se traite de façon immédiate avec le modèle volumique, à condition que le volume  $V_T$  soit limité à une intégration dans le volume de la couche :

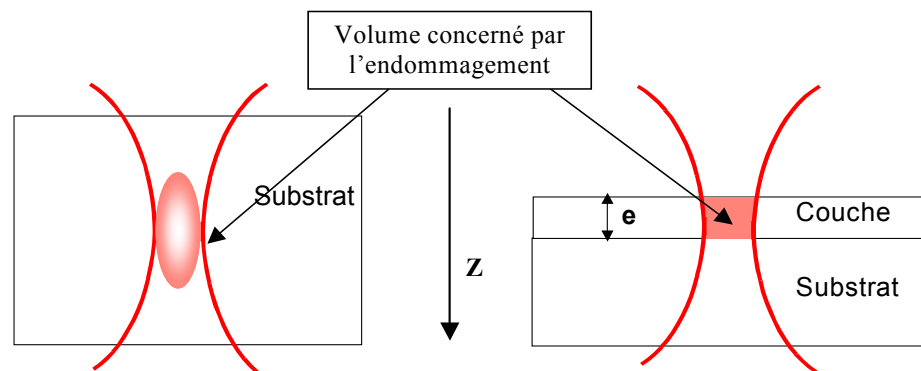
$$V_T = \frac{\pi}{2} \int_0^e w^2(z) \ln \left( \frac{F}{T} \frac{w_0^2}{w^2(z)} \right) dz \quad (8)$$

Ce modèle a été appliqué à une couche mince de silice déposée par évaporation par canon à électron, la densité de défaut trouvée à partir du tracé des courbes de seuil (**un défaut pour  $(10\mu\text{m})^2$** ) correspond à l'ordre de grandeur du nombre de précurseurs révélés par l'observation de la surface par microscopie à force atomique (fig.7)<sup>11</sup>.

Il faut noter ici que cette observation a été réalisée sur une couche mince exempte de tout défaut visibles au microscope avant tir, et dont l'image AFM de l'impact révèle clairement des zones aléatoires initiant la rupture. Ceci constitue une autre confirmation de l'hypothèse de l'existence de sites précurseurs de très petites tailles.



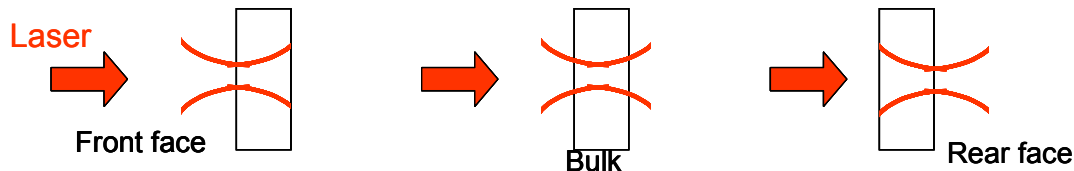
**Fig. 7 : Observation au microscope à force atomique d'une couche mince de silice irradiée à 1064nm avec un faisceau de 45μm pour une fluence de 10J/cm<sup>2</sup>.**



**Fig. 8 : Zone concernée par l'endommagement dans le cas d'un substrat et d'une couche mince.**

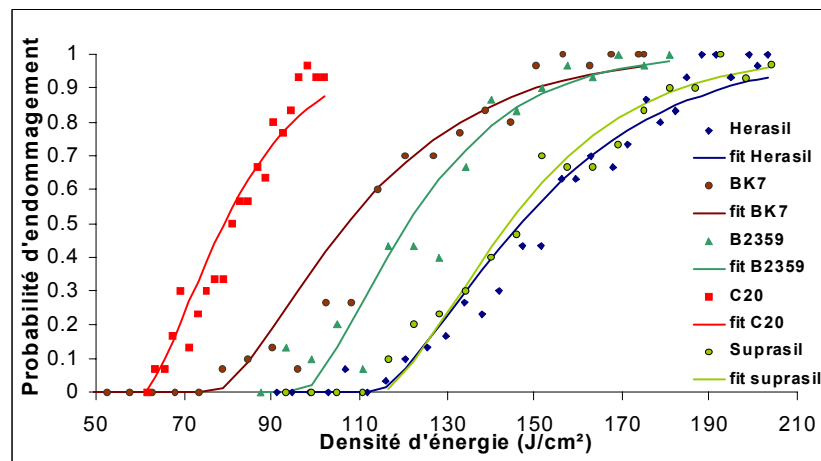
### I.3.2. Résultats obtenus sur différents substrats en volume et surfaces

Grâce à l'utilisation d'un faisceau focalisé, il est possible de mener une étude locale en profondeur, et donc de déterminer la tenue au flux du matériau en face avant, face arrière et volume (fig. 9). Précisons que la profondeur de champ est ici de  $100\mu\text{m}$ .



**Fig. 9 : Position du waist pour déterminer la tenue au flux du volume et des faces de l'échantillon**

La figure 10 représente les courbes de probabilité d'endommagement obtenues, dans les mêmes conditions de test, dans le volume de différents verres. La dispersion des seuils est systématique, et l'ajustement par le modèle présenté précédemment est représenté en trait continu. On notera que ces ajustements nous permettent de déduire des densités de défauts très proches d'un matériau à l'autre. Les valeurs sont comprises entre 31 et 63 défauts pour  $(100\mu\text{m})^3$ . Les seuils d'endommagement sont par contre très différents sur ces matériaux, la silice Suprasil possédant la meilleure tenue au flux, avec plus de  $110\text{J}/\text{cm}^2$  pour seuil bas.



**Fig. 10 : Probabilité d'endommagement obtenue en volume pour différents verres pour une irradiation en mode 1-on-1 à 1064nm.**

La figure 11 représente les résultats obtenus sur la silice Herasil, en surface et en volume pour deux longueurs d'onde d'irradiation (355nm et 1064nm).

Si l'on compare la tenue au flux du volume à celle de la surface, on peut constater que pour les deux longueurs d'onde utilisées nous obtenons un facteur 2,5 sur les valeurs du seuil. La surface de silice est donc nettement plus sensible au flux que le volume, et ce pour les deux longueurs d'onde. Ce résultat prouve que des défauts spécifiques à la surface initient l'endommagement en premier lieu, leur tenue étant plus faible que celle des défauts de volume. Les densités de défauts déduites des ajustements sont également très différentes en surface et en volume. On trouve en effet une **densité de défauts en surface  $10^5$  fois plus importante que celle obtenue en volume.**

Si l'on compare d'autre part les résultats en regard du comportement spectral ; un décalage de la courbe de probabilité est observé pour la surface et le volume, et on constate que la tenue aux flux chute en effet d'un facteur 3 quand la longueur d'onde diminue. Ce résultat peut s'expliquer par l'augmentation de l'absorption du matériau dans l'UV. Cependant une étude plus fine est nécessaire pour déterminer si seule cette variation d'absorption est à l'origine de ce décalage, car les effets de sur-intensité d champ dans les défauts varient aussi avec la longueur d'onde. Les données montrent également que les densités de défauts (surfaces et volumes) que nous extrayons sont identiques pour les deux longueurs d'onde. Ce résultat laisse supposer que dans les deux cas les mêmes défauts sont à l'origine de l'endommagement.

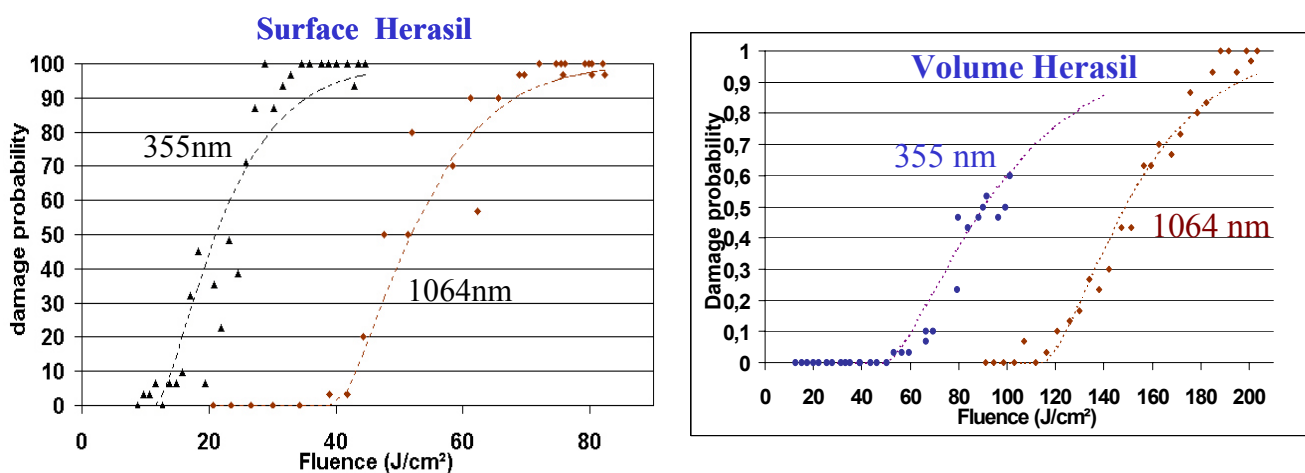
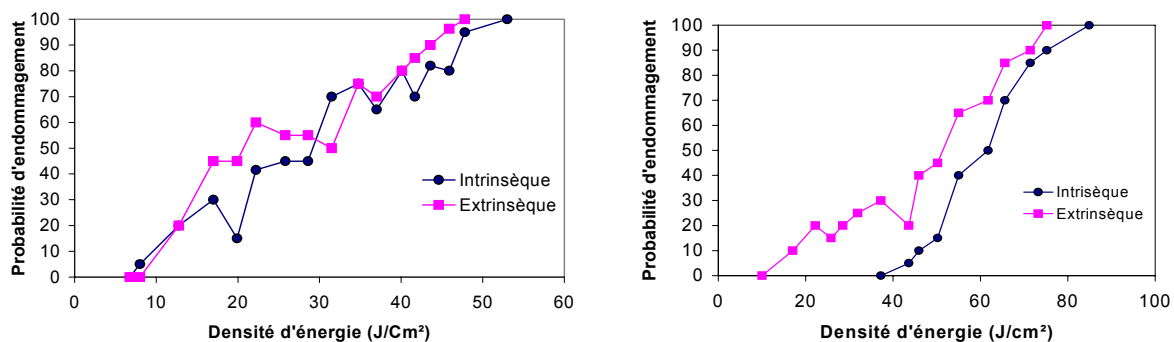


Fig. 11 : Probabilité d'endommagement en volume et surface de la silice Herasil obtenues pour une irradiation en mode 1-on-1 à 1064nm et 355nm

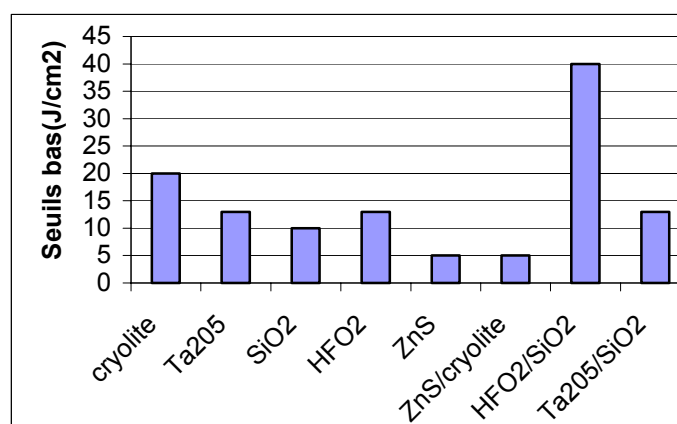
### I.3.3. Résultats obtenus sur des couches minces optiques

Il faut noter que les résultats de tenue au flux sur les couches minces ont été obtenus avant l'automatisation du dispositif. Ces conditions de test rendaient le tracé de courbes statistiques difficile. De plus, sur l'ensemble des couches minces testées, nous avons pu noter l'existence de défauts de tailles microniques visibles en surface, que nous avons qualifiés plus haut, de défauts « extrinsèques ». Il a donc fallu réaliser manuellement des tirs sur les défauts visibles et sur des zones exemptes de ces défauts (zone intrinsèque) pour donner le maximum d'information sur la tenue au flux. Sur la plupart des films minces, nous avons pu constater une différence entre les zones intrinsèque et extrinsèque. La figure 12, relative à un miroir  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  réalisé suivant deux conditions de dépôt, illustre bien le rôle que peuvent jouer les défauts visibles. Dans le graphe de droite, on voit bien que les défauts visibles réduisent fortement la tenue au flux du matériau. Un contrôle de la création de ces défauts durant le dépôt permettrait d'augmenter le seuil d'endommagement de manière significative. On notera ici, comme nous l'avons spécifié en introduction de ce chapitre, que seul l'utilisation d'un petit faisceau permet de discriminer ces comportements intrinsèques et extrinsèques, et ainsi de rétroagir sur les techniques de dépôt de manière pertinente.



**Fig. 12 : Suivi des seuils intrinsèque et extrinsèque pour deux miroirs  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  réalisés avec des conditions de dépôt différentes.**

La figure 13 représente une compilation de résultats de seuil bas obtenus sur différentes couches minces irradiées à 1064nm (couches uniques et miroirs) et réalisées au laboratoire. Pour des raisons de clarté seules les valeurs intrinsèques sont reportées. On précisera ici que les composants sont obtenus sans optimisation, avec un processus classique d'évaporation par canon à électron.



**Fig.13 : Seuils bas d'endommagement laser pour différentes couches minces optiques et empilements.**

Le matériau en couche unique ayant la meilleure tenue au flux est la cryolite ( $20\text{J}/\text{cm}^2$ ), le ZnS ayant par contre la plus faible tenue au flux ( $5\text{J}/\text{cm}^2$ ), imposant sa faible valeur au miroir ZnS/cryolite. En ce qui concerne le miroir  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ , il présente la meilleure tenue au flux avec  $40\text{J}/\text{cm}^2$  en seuil bas intrinsèque. On peut également noter que chacun des autres matériaux en couche mince a une tenue respective de 10 ou  $13\text{J}/\text{cm}^2$ . La répartition du champ dans l'empilement  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  peut modifier le comportement en regard de la tenue au flux. Il se peut également que dans le cas d'un miroir les dernières couches soient plus « propres » que les couches du début de dépôt, ce qui expliquerait une meilleure tenue au flux. Nous rappelons ici que ce couple de matériaux ( $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ) a été retenu pour constituer les miroirs 1064nm dans le projet Mégajoule et NIF.

## **I.4. Etude de la couche de passage sur les substrats de silice : diagnostic par endommagement des liquides de polissage.**

### **I.4.1. Contexte de l'étude**

Lors de l'irradiation d'un substrat optique de silice super-poli (Suprasil, Herasil..), il apparaît tout d'abord et de manière systématique un claquage sur l'une des faces. Les études réalisées en faisceau focalisé, permettant de dissocier les seuils de claquage du volume et des surfaces, confirment ce résultat. En effet la tenue au flux en surface est approximativement 2,5 fois plus faible que celle du volume, ce facteur étant obtenu indifféremment à 1064nm et 355nm (cf. § I.3 fig.11).

Ce résultat prouve de manière certaine l'existence de centres précurseurs spécifiques à la surface.

Si l'on cherche à déterminer les facteurs responsables des différences observées entre la surface et le volume des substrats au regard de la tenue au flux, deux possibilités s'offrent d'évidence à nous :

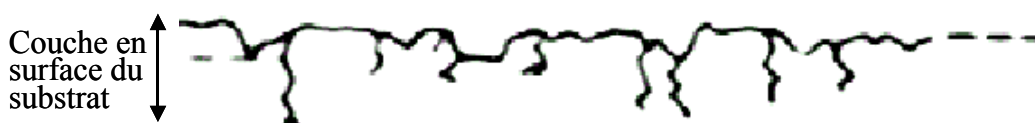
- D'une part nous pouvons citer l'existence de contaminants dus à l'atmosphère dans laquelle est placé l'échantillon durant le test (l'échantillon n'étant pas sous vide), ou les résidus liés au nettoyage classique des composants optiques avant leur utilisation.

- D'autre part nous pouvons incriminer l'existence d'une « **couche de passage** » induite par le processus de polissage. En effet l'usinage, ainsi que les premières phases de polissage induisent des contraintes qui génèrent des micro-craquelures dans le matériau dont les profondeurs peuvent atteindre plusieurs dizaines de microns (Fig. 14). Ces micro-craquelures sont ensuite réduites et comblées, dans des étapes plus fines du processus de polissage, avec par exemple l'utilisation de silice colloïdale pour parvenir au super-poli final. Les expériences de tenue au flux réalisées au laboratoire sur des silices de type Suprasil et Herasil, n'ont pas révélé de manière significative l'influence du nettoyage ou de l'atmosphère autour de l'échantillon. En effet, en ce qui concerne les poussières, elles sont en général éjectées ou brûlées et ne conduisent pas à un endommagement de la surface.

L'influence de l'étape de polissage sur la tenue au flux de surface, semble quant à elle plus vraisemblable. En effet si l'on observe la figure 15, l'on peut voir que la probabilité d'endommagement peut-être très différente d'un type de poli à l'autre. De plus lors d'irradiations multiples sur le matériau nous révélons clairement au microscope en mode interférentiel et à l'AFM des micro-rayures de profondeur variable (fig. 16). Nous retiendrons donc ici l'idée que la couche de passage liée aux étapes de polissage, constitue une zone critique où peuvent se trouver les précurseurs de l'endommagement.

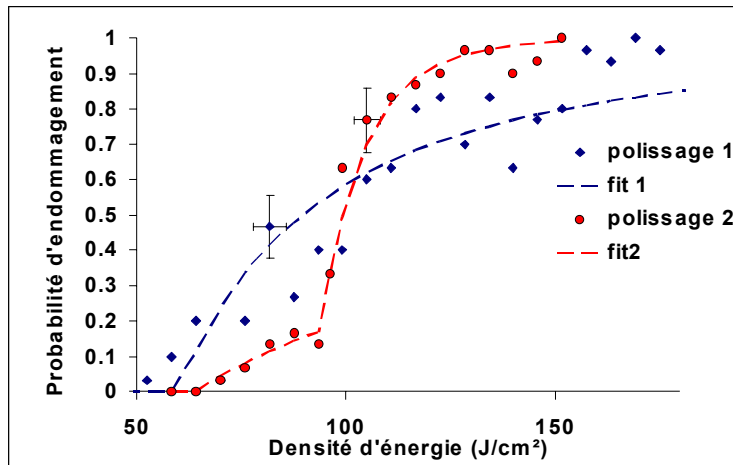
Le propos de ce chapitre est de fournir de nouveaux arguments permettant d'incriminer cette région du matériau.

Pour cela nous avons réalisé une étude consistant à déterminer la tenue au flux de différents liquides de polissage, afin de tenter de trouver des corrélations avec les valeurs de seuil des précurseurs de surfaces ayant été polies avec ces liquides.

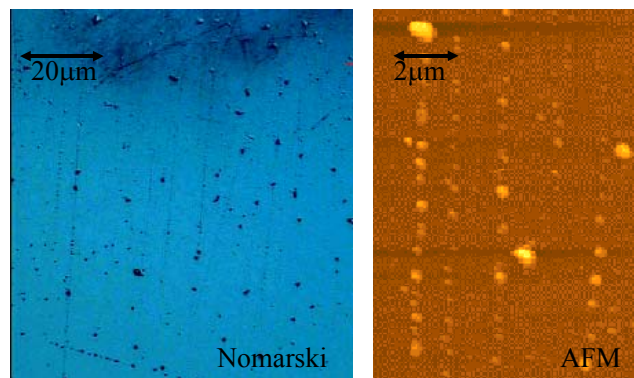


**Fig. 14 : Aspect de la zone de fragilisation en surface liée au processus de polissage : la profondeur peut varier de quelques centaines de nanomètres à quelques microns.**





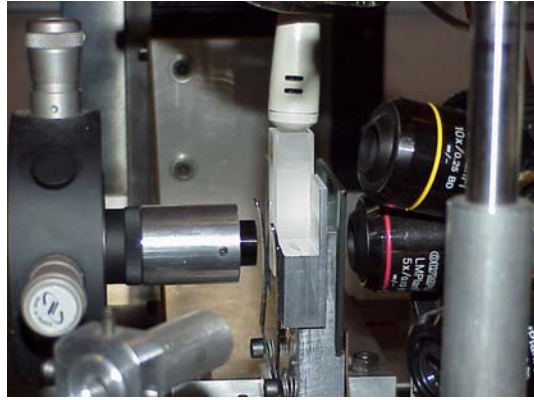
**Fig. 15 : Probabilité d'endommagement sur la surface de silice pour deux polis différent testés en mode 1-on-1 à 1064nm.**



**Fig. 16 : Révélation de rayures par irradiation multiple à 1064nm sur super poli de silice.**

#### **I.4.2. Mesure de tenue au flux dans les liquides de polissage**

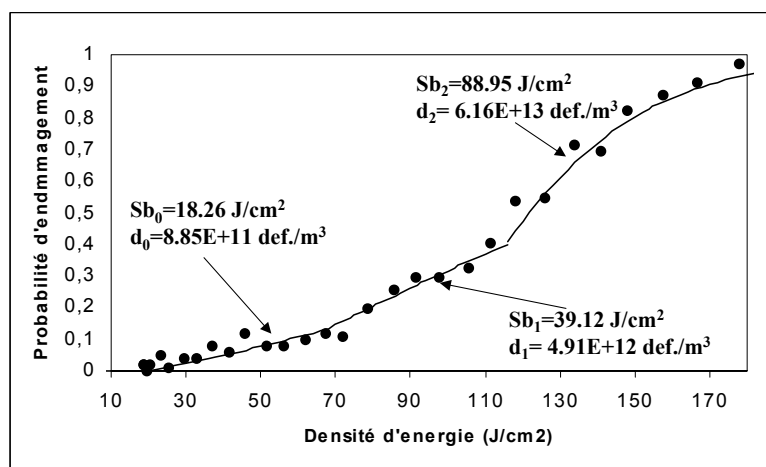
La partie du dispositif expérimental représentée Figure 17, montre de quelle manière la détection de l'endommagement est réalisée dans les liquides. En effet la détection ne se fait plus par le traitement de l'image de la zone irradiée, mais par l'acquisition de l'onde acoustique engendrée par l'endommagement. Le liquide à tester est placé dans une éprouvette de quartz, un microphone placé au-dessus de celle-ci détecte s'il y a endommagement ou non. Le protocole de mesure et le tracé de courbe de probabilité d'endommagement est le même que dans le cas d'échantillons solides.



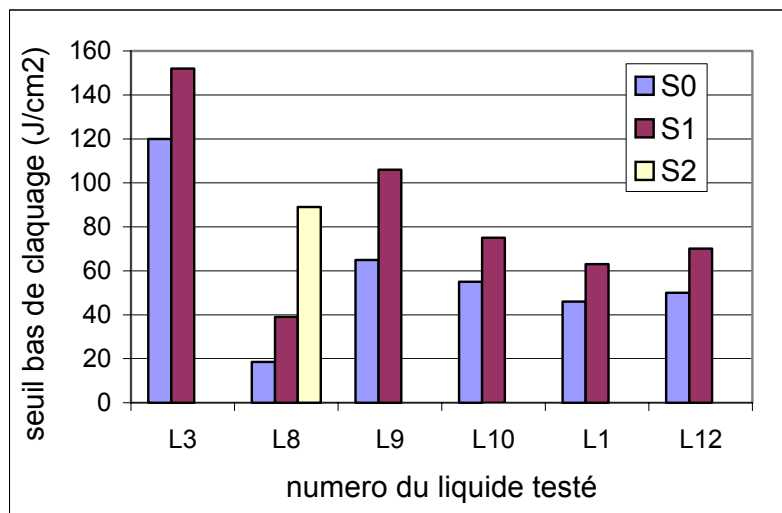
**Fig. 17 : Vue du dispositif au niveau de l'échantillon (cuve) permettant de réaliser la détection de l'endommagement dans les liquides de polissage.**

Rappelons ici que la technique d'endommagement dans les liquides a été éprouvée, et nous a permis à partir de tests sur des liquides calibrés de valider avec une grande fidélité le modèle statistique proposé pour le tracé des courbes de seuil<sup>11</sup>.

Les différents liquides de polissage testés sont connus par le polisseur pour leurs différentes propriétés abrasives ou de remplissage. Pour des raisons de confidentialité nous ne possédons aucune information sur le type d'impuretés utilisées ni sur leur concentration. Les liquides sont simplement numérotés, leurs aspects vont du translucide à l'opaque blanchâtre. Pour certains liquides, les concentrations en particules sont telles qu'il a fallu les diluer fortement avec de l'eau dé-ionisée. Cette eau a bien-entendu été spécifiée de manière indépendante afin d'en extraire les seuils intrinsèques et ne pas les confondre à ceux des liquides de polissage associés. La figure 18 montre un exemple de courbe de seuil réalisée dans un des liquides translucides (L8). Les valeurs de seuils bas obtenues sur l'ensemble des liquides testés sont résumées dans la figure 19. Les densités des différents défauts varient de  $10^{13}$  à  $10^{11}$  défauts /mm<sup>3</sup>.



**Fig. 18 : Probabilité d'endommagement dans le liquide de polissage L8 irradié en mode 1-on-1 à 355nm**



**Fig. 19 : Seuils bas de claquage des défauts pour les différents liquides de polissages testés.**

On peut noter figure 19 qu'il existe pour chaque liquide, au moins deux types de défauts identifiables (car au moins deux seuils différents). Pour le liquide L8 trois défauts apparaissent clairement (fig. 18). On rappelle que les ruptures de pente observées sur cette courbe de seuil nous indiquent le nombre de races de défauts ainsi que leurs densités et leur seuils bas. Une comparaison entre les liquides révèle également une dispersion importante des valeurs de seuil, qui reflète la diversité des défauts présents dans ces liquides. On trouve la valeur maximum pour L3 avec un défaut tenant à  $150 \text{ J/cm}^2$ , et un minimum pour L8 à  $18 \text{ J/cm}^2$ .

Ces résultats nouveaux sur les liquides de polissage<sup>26</sup>, sont à mettre en regard des résultats d'endommagement obtenus sur la silice Suprasil. La surface de cette silice a en effet été traitée avec ces différentes solutions et testée à la même longueur d'onde (355nm). Il apparaît de manière étonnante que le seuil bas de cette surface à 355nm est de  $20 \text{ J/cm}^2$  (§ I.3 fig.11), seuil voisin de la valeur minimale obtenue sur les particules initiatrices dans le liquide L8 ( $18 \text{ J/cm}^2$ ).

On pourrait donc supposer qu'un résidu du liquide L8 puisse constituer le précurseur de l'endommagement laser en surface. Pour aller plus loin dans l'étude nous devons tester des substrats à différentes étapes de polissage, et les liquides de polissages associées.

D'autre part il apparaît intéressant de déterminer **l'épaisseur de la couche de passage** en utilisant le modèle cité au chapitre I.3 dans le cas d'une couche mince. En effet par l'utilisation d'un faisceau très focalisé sur la surface il est possible de réaliser des courbes de probabilité d'endommagement pour différentes position en Z. Il faut bien sûr disposer d'un déplacement en Z de l'objectif de focalisation très précis ( $0,1 \mu\text{m}$ ). On peut ainsi réaliser une

cartographie en  $Z$  de la densité de défauts via le tracé de courbe de probabilité d'endommagement pour chaque position<sup>26</sup>. Cette technique peut également être utilisée pour l'étude des couches minces optiques.

## **I.5. Développement d'outils de diagnostic non destructifs pour la détection des centres précurseurs de l'endommagement**

Dans le chapitre I.3, on a pu voir comment il était possible de mettre en évidence des nano-sites précurseurs du claquage dans les matériaux soumis à des flux intenses et d'extraire les densités de ces défauts à partir des courbes de probabilité d'endommagement. Cette méthode est évidemment destructive et il ne sera pas utile ici de préciser tout l'intérêt d'inventer et mettre en œuvre des méthodes de détection non destructives pour l'utilisateur. De plus la détection non destructive est extrêmement importante pour appréhender les mécanismes d'initiation de l'endommagement, comme nous le verrons plus loin.

La première difficulté pour mettre en œuvre ces méthodes non destructives est liée à la densité remarquablement faible des défauts recherchés, de l'ordre de quelques individus dans un cube de 100  $\mu\text{m}$  de côté dans le cas des substrats. Compte tenu de la taille pressentie pour ces sites (entre 1 nm et 100 nm de rayon), on comprend pourquoi l'utilisation des techniques à sonde locale ou champ proche n'a pas donné de résultats probants à ce jour. Mais au delà du problème de localisation, lié à la taille de la particule, vient se superposer le problème de la détectivité du dispositif.

### **I.5.1. Limite de détection des nano-centres**

On se propose ici de donner un ordre de grandeur de la taille minimale d'un nano-centre inclus dans la silice, détectable par un moyen non destructif, tel que la photothermie. Dans ce cas précis, on souhaite obtenir la puissance absorbée par une particule dans une matrice de silice. L'absorption dépendra essentiellement de la taille et de la partie imaginaire de l'indice.

La densité volumique de puissance absorbée dans un défaut est donnée par la formule classique :

$$\frac{dA}{dv} = \frac{\omega}{2} (\varepsilon'' E^2 + \mu'' H^2)$$

où  $dv$  est l'élément de volume,  $\varepsilon''$  et  $\mu''$  sont respectivement les parties imaginaires de la permittivité et de la perméabilité du défaut,  $(E, H)$  le champ électromagnétique. On supposera dans notre cas un milieu non magnétique ( $\mu'' = 0$ ).

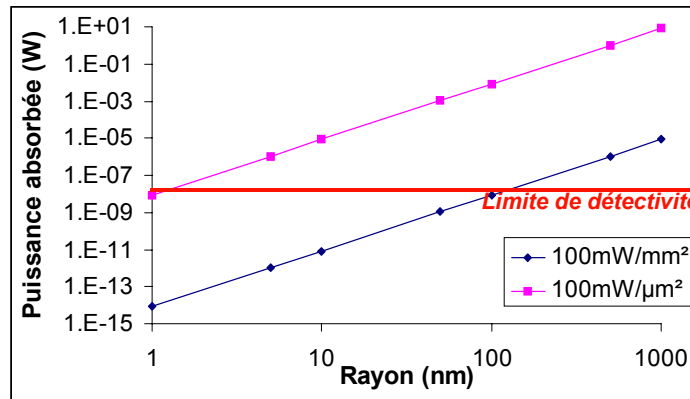
Après calcul<sup>27</sup> on aboutit à l'expression :

$$\Delta A \approx 4\pi \left( \frac{n' n''}{n_g} \right) \beta \left( \frac{\Delta v}{\lambda} \right) \left( \frac{d\Phi}{d\Sigma} \right)$$

Si l'on considère un faisceau pompe focalisé de type laser Argon de 100mw sur une surface de  $(1\text{mm})^2$  ou de  $1\mu\text{m}^2$ , on obtient des densités d'énergie de  $10^5 \text{ W/m}^2$  et de  $10^{11} \text{ W/m}^2$ . Si l'on admet que l'indice réel du défaut est proche de celui de la matrice ( $n'=n_g$ ) on a donc :

$$\begin{aligned} \Delta A &\approx (n'' \beta \Delta v) 2.10^{12} \text{ W} && \text{pour } 10^5 \text{ W/m}^2 \\ \Delta A &\approx (n'' \beta \Delta v) 2.10^{18} \text{ W} && \text{pour } 10^{11} \text{ W/m}^2 \end{aligned}$$

Traçons ainsi les courbes donnant la puissance absorbée en fonction du rayon des particules, en normalisant pour une valeur unité de  $n'' \beta$  (particule métallique) (fig.20). Il sera aisé de prendre en compte  $n''$  par une multiplication simple, mais par contre les effets de sur-intensification moyens dans le défaut ne sont pas pris en compte.



**Fig. 20 : Puissance absorbée par une particule métallique en fonction de son rayon pour deux puissances incidentes différentes.**

Si la limite de détectivité des méthodes photothermiques en puissance absorbée est de l'ordre de  $10^{-9} \text{ W}^{28,29}$ , cette figure permet, par une approche approximative mais simple, de prévoir qu'avec une densité d'énergie incidente de  $100 \text{ mW}/\mu\text{m}^2$ , il serait possible de détecter une **particule métallique** de rayon supérieur à **1nm**.

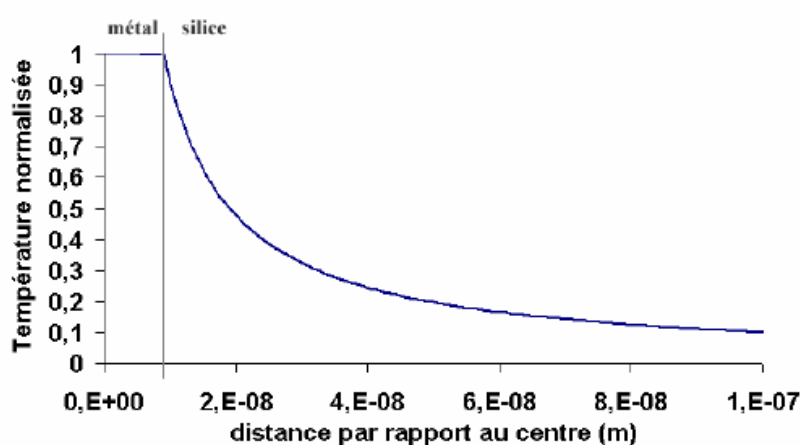
Le même raisonnement peut être appliqué dans le cas d'une **particule diélectrique** ( $n''=10^{-3}$ ), on pourra dans ce cas détecter une sphère de rayon **10nm**.

### 1.5.2. Diffusion thermique autour d'un nano-centre

Afin de détecter un objet absorbant de taille nano-métrique dans un matériau non absorbant, il est intéressant d'avoir une idée sur l'étendue spatiale des modifications induites autour de ce centre. On peut en effet imaginer que lorsque l'on chauffe, par un faisceau

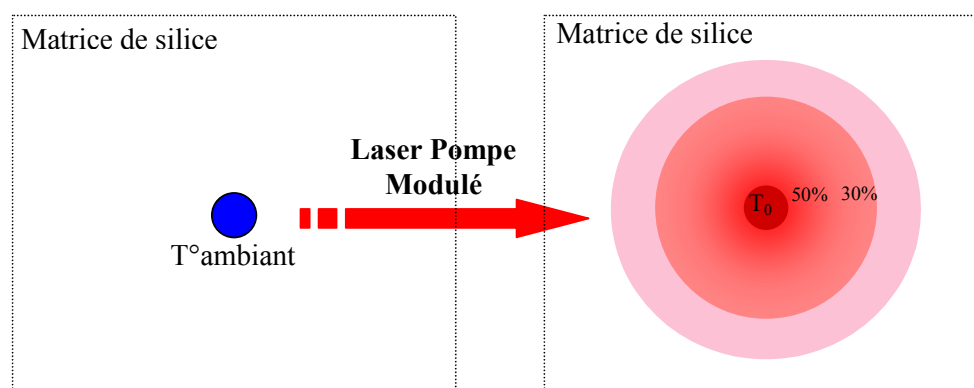
pompe, un centre absorbant, il se comporte comme un radiateur et crée autour de lui un gradient d'indice induit par le gradient de température. Cette zone s'étend sur une région supérieure au rayon du centre, d'où un effet de « **boule thermique** ». Ces modifications induites sous flux pourraient alors être détectées, d'une part du simple fait de leur existence et d'autre part via la détection de l'augmentation de taille de l'objet, qui dans notre cas est une donnée critique.

Si l'on considère par exemple, un défaut de 10nm de rayon, pompé avec une puissance  $P$  donnée, à une fréquence de 1Khz, l'élévation de température modulé, normalisée en fonction de la distance au centre de la particule est donnée figure 21.



**Fig. 21. Variation de la température normalisée sur une bille métallique de rayon 10nm en fonction de la distance au centre de la bille.**

La figure 22 est une représentation schématique du gradient thermique induit sous flux, qui permet de passer d'un nano-centre à une « **boule thermique** » de rayon micrométrique.



**Fig. 22 : Représentation de la diffusion thermique d'une bille métallique dans une matrice de silice**

### **I.5.3. Diffusion lumineuse induite sous flux**

Cette étude a été réalisée pour sa première partie à l'occasion d'un **détachement au Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL-USA)**. Il s'agissait de développer une **méthode non destructive de caractérisation** de l'endommagement laser à 1064nm dans les couches minces optiques, afin de révéler la présence de centres précurseurs (application aux optiques du projet NIF). Le projet a été mené dans le département « Endommagement laser » dirigé par Mark Kozlowski en collaboration avec Zhouling Wu. Ce détachement a été financé par une bourse OTAN obtenue en 1998 pour une période de 9 mois.

La technique **de diffusion induite sous flux** (LMS pour Laser Modulated Scattering) développée initialement par Zhouling Wu<sup>30</sup> est dérivée de la déflexion photothermique<sup>31</sup> en réflexion. Cette dernière très utilisée, consiste à focaliser en une même zone, un faisceau pompe normal à la surface, et un faisceau sonde en incidence oblique. Les modifications du faisceau sonde réfléchi, liées à la déformation de surface ou au changement d'indice induit par le faisceau pompe, permettent de déduire l'absorption en cette zone. La technique LMS quant à elle, consiste, dans cette même configuration, à mesurer les variations de la diffusion du faisceau sonde, provoquées par l'échauffement du matériau.

Avant de détailler le principe des dispositifs expérimentaux réalisés, listons ici les principaux avantages de cette technique tels qu'ils ont été initialement énoncés<sup>28, 32</sup>

- Le « LMS » étant une technique utilisant le faisceau diffus et non le spéculaire comme en photothermie standard, apparaît d'emblée adaptée à la détection de défauts de taille nanométrique<sup>33</sup>.
- Cette technique est également bien adaptée à des couches où la rugosité est de l'ordre de grandeur de la taille des centres précurseurs. En effet en diffusion « DC » le fond continu « noie » le signal issu du défaut. Par contre, dans le cas de la diffusion induite sous flux (diffusion « AC »), seuls les défauts locaux absorbants seront révélés (fig. 23). On peut donc espérer détecter ces centres sur des échantillons de silice polie ou sur des couches minces optiques.
- En utilisant simultanément la diffusion DC et la diffusion induite sous flux (AC), il est possible de distinguer les défauts absorbants et diffusants des défauts simplement diffusants. Ceci constitue un atout pour espérer différencier les mécanismes d'initiations créés par absorption ou par sur-intensification du champ électrique local.



- Le « LMS » est enfin adapté à l'étude des zones très perturbées, comme les endommagements, les débris... Cette spécificité originale est particulièrement intéressante notamment pour l'étude de la croissance des dommages. Ces études sont en effet difficiles, en photothermie en réflexion car le faisceau spéculaire est alors trop défléchi par les perturbations morphologiques et donc peut donner une information erronée.

La technique de diffusion induite sous flux, apparaît donc comme un outil photothermique complémentaire de diagnostic des nano-centres enlevant certaines limitations des autres techniques photothermiques.

### • Principe des expériences et résultats clés obtenus au LLNL

Durant ma période de détachement, deux dispositifs ont été mis en œuvre afin de fiabiliser et d'optimiser le principe de diffusion induite sous flux :

#### - La technique à deux faisceaux :

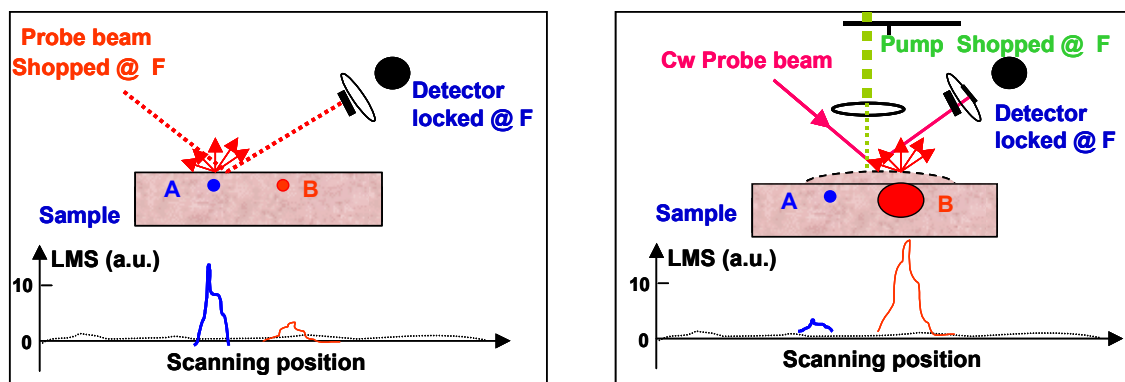


Fig. 23 : Schéma de principe de la diffusion induite sous flux : technique à deux faisceaux.

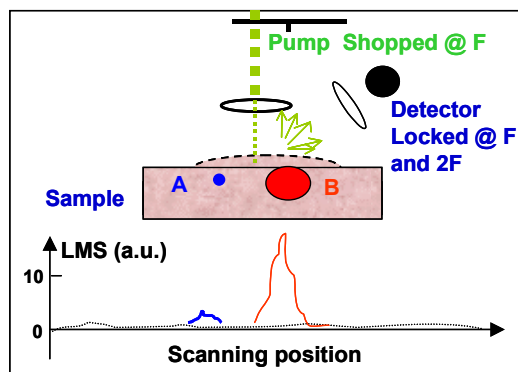
Un faisceau pompe (532 nm) modulé à une fréquence de 70 hertz est focalisé sur l'échantillon. Dans le premier dispositif, une lentille de collection bloquant le spéculaire permettait de récupérer le signal diffus sur un grand angle solide (fig.23). L'installation d'une **fibre optique** placée aux petits angles et très proches de la surface, a permis **d'optimiser le rapport signal sur bruit** ainsi que la répétabilité des mesures. La fibre est connectée à un détecteur centré sur la longueur d'onde du sonde HeNe, relié à une détection synchrone calée sur la fréquence de modulation. Le signal obtenu est donc le signal de diffusion du faisceau

sonde (HeNe) modulé à la fréquence du faisceau pompe (Argon). Ce signal (diffusion AC) nous informe sur les variations de la diffusion induites par le gradient de température causé par l'absorption du faisceau pompe. Un deuxième détecteur, placé sur le trajet du faisceau spéculaire, nous donne simultanément un signal photothermique classique, afin de comparer les deux techniques. Nous avons obtenu expérimentalement dans les deux cas des signaux proportionnels à la puissance du faisceau pompe, et qui diminue quand la fréquence du modulateur augmente, ce qui est conforme aux prédictions théoriques.

Il faut noter que pour la technique « LMS », il est très important de prêter une attention particulière à la linéarité du signal photothermique. En effet, le signal diffus étant très faible, comparé au spéculaire, l'utilisateur a tendance à trop augmenter l'énergie du faisceau pompe afin d'obtenir du signal.

Une image de la diffusion (signal DC, HeNe modulé) est simultanément acquise dans les deux cas. Des comparaisons entre les cartographies en diffusion AC et DC ont été réalisées, ce qui nous a permis de différencier clairement les défauts diffusants absorbants des défauts diffusants non absorbants<sup>30</sup>. Ces derniers peuvent en effet également être responsables de l'endommagement uniquement par une sur-intensification du champ électrique local<sup>34</sup>.

#### - La technique originale à un faisceau :

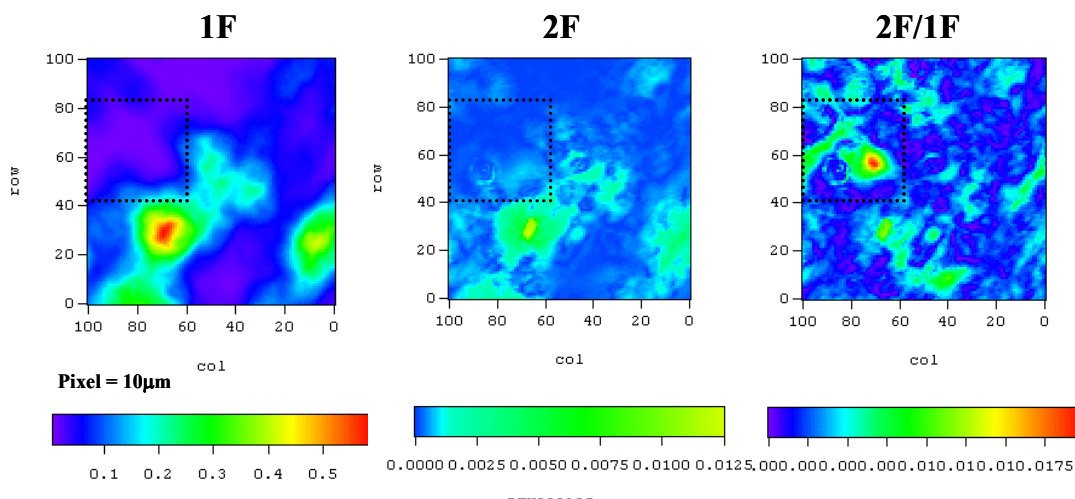


**Fig. 24 : Schéma de principe de la diffusion induite sous flux : technique à un faisceau.**

L'intérêt ici est de simplifier le dispositif expérimental, en évitant la procédure d'alignement des faisceaux, délicate et source d'erreurs. Le principe de mesure est le même que pour la technique à deux faisceaux, mais dans ce cas le faisceau pompe est également utilisé comme sonde. Le détecteur est calé sur la longueur d'onde du faisceau pompe, la mesure du signal modulé informe sur la diffusion (signal DC), alors que la mesure du second harmonique nous informe sur les variations de diffusion induites sous flux (signal AC). Pour

cette technique, nos mesures ont montré qu'il était impératif que le profil du faisceau avant le chopper soit symétrique afin de ne pas générer un second harmonique supplémentaire perturbant la mesure. Théoriquement le faisceau pompe et sonde étant le même, on doit s'attendre à un premier harmonique proportionnel à la puissance alors que le second harmonique doit être proportionnel au carré de celle-ci<sup>30</sup>. Nous avons pu valider ces prédictions sur plusieurs matériaux massifs et en couches minces. Les premiers résultats obtenus par ces techniques ont été présentés à Boulder (Colorado) en octobre 1998<sup>35</sup>.

La figure 25 donne un exemple de signal obtenu par cartographie d'une surface de verre laser YAG. On distingue clairement pour le premier harmonique une zone très diffusante du matériau. L'acquisition du deuxième harmonique révèle une toute autre zone (petit encadré en pointillé) « absorbante » invisible au premier harmonique.



**Fig. 25 : Cartographie du signal diffus au premier (signal DC) et deuxième harmonique (signal AC) de la fréquence du faisceau pompe, réalisée sur la surface d'un verre laser YAG**

La nature photothermique du signal révélée au deuxième harmonique sur ces zones a été validée<sup>33</sup>. Le signal normalisé 2F/1F, tout comme le signal normalisé AC/DC en technique deux faisceaux, représente uniquement les sites absorbants non diffusants.

#### **I.5.4. Diffusion angulaire induite sous flux**

Les travaux sur la diffusion induite sous flux ont été poursuivis dès mon retour des USA, à l'Institut Fresnel. Le but étant de mettre à profit les compétences du laboratoire en diffusion lumineuse résolue angulairement, afin de mener une étude fine du signal «LMS ». En effet la diffusion angulaire peut permettre de mieux comprendre l'origine du signal diffus photo-induit obtenu en scrutant différents angles de collection. De plus la diffusion angulaire

est adaptée à la détection de défauts isolés ou non<sup>36</sup> toujours dans le but de détecter les nano-centres. Les variations induites peuvent provenir de changement d'indice local, mais également de modification de la rugosité sous flux.

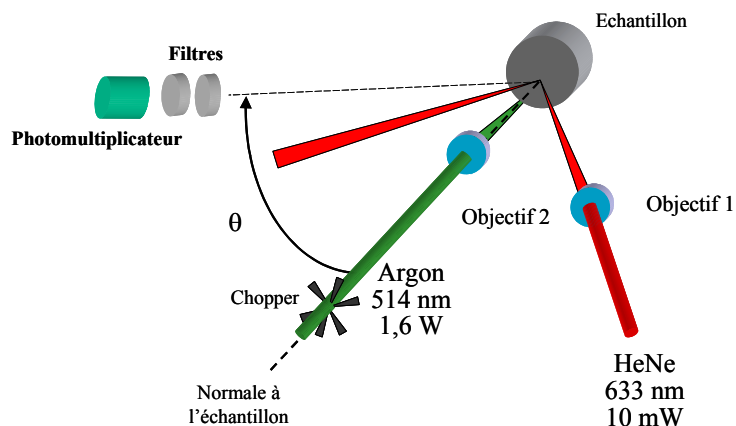
Nous avons pu, dans un premier temps, montrer par simulation que des variations de rugosité sous flux de l'ordre de l'Angström seraient détectables<sup>30</sup>, ainsi que des variations d'indice de l'ordre de  $10^{-2}$ .

### • Premiers résultats expérimentaux obtenus sur le diffusomètre

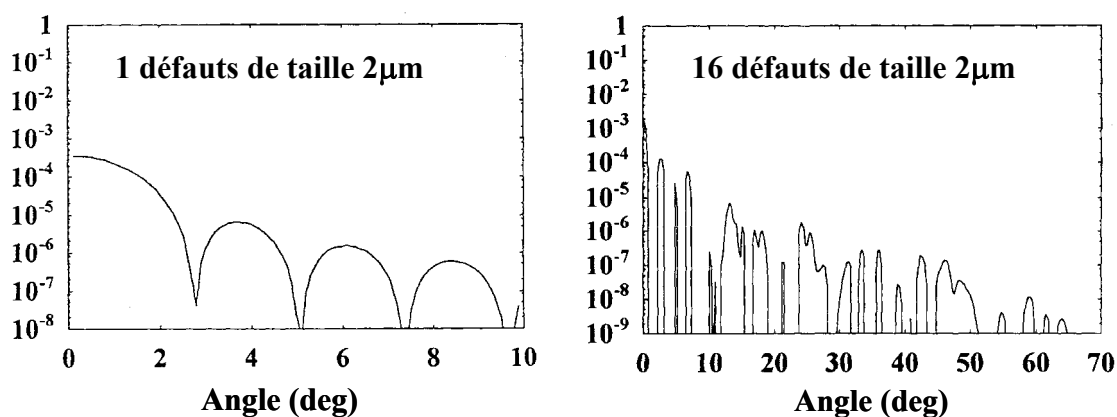
Dans la configuration choisie, le détecteur est en dehors du flux réfléchi et recueille donc uniquement la lumière diffusée. On exalte ainsi la sensibilité à toute modification de rugosité ou d'hétérogénéité créée sous flux, ce qui constitue la force et l'originalité de la technique. Ainsi, le montage correspond à celui de la figure 26 ; en l'absence de faisceau pompe, la diffusion angulaire s'écrit comme  $I_0(\theta)$ , avec  $\theta$  l'angle de diffusion par rapport à la normale. Cette diffusion est provoquée par des rugosités de surface et hétérogénéités de volume, décrites par des fonctions  $h(r)$  et  $\Delta\epsilon(r,z)$ . Par contre, en présence d'un faisceau pompe modulé à la fréquence  $\Omega$ , la puissance absorbée vient modifier ces grandeurs qui doivent alors s'écrire comme  $\delta h(r, \Omega)$  et  $\delta[\Delta\epsilon(r,z), \Omega]$  ; on mesure alors la diffusion angulaire  $I(\theta, \Omega)$  résultant de ces variations photo-induites de rugosité et d'hétérogénéité. Cette technique paraît ainsi bien adaptée à la détection des nano-centres et devrait pouvoir nous donner une information nouvelle sur les nano-centres, à savoir leur indicatrice de diffusion.

Si l'on s'intéresse au cas d'un défaut isolé ou de plusieurs défauts sous le faisceau, pour des tailles d'une centaine de nanomètres on peut espérer engendrer une « **boule thermique** » de **taille micrométrique** (défini en I.5.2) modulée à la fréquence du pompe(10Hz).

Il suffirait ensuite de faire diffracter un faisceau sonde sur ces « boules thermiques » pour détecter la présence des particules **exaltées sous flux**. Un avantage majeur que fournirait cette méthode réside dans la taille des anneaux de diffusion angulaire, qui varie avec la fréquence. En effet, le champ diffusé en champ lointain est proportionnel à la fonction de Bessel, Transformée de Fourier des particules, d'où l'apparition de lobes que nous avons illustrés en figure 27.



**Fig. 26 : Principe du dispositif de détection angulaire du flux diffus induit sous flux laser modulé**



**Fig. 27 : Simulation du signal de diffusion induit sous flux, dans le cas d'une particule isolée et de plusieurs particules de taille micrométrique.**

L'objectif de cette étude a été dans un premier temps de valider l'ensemble des résultats observés à angle fixe au USA dans nos conditions expérimentales, et dans un second temps de tenter d'obtenir des informations complémentaires liées à l'étude angulaire.

Pour cela, une série de mesures a été réalisée sur des verres absorbants de densités décroissantes de manière à appréhender le seuil de détectivité sur le montage actuel. Ces essais ont été réalisés sur le diffusomètre du laboratoire, aménagé de manière spécifique dans ce but.

L'échantillon est éclairé à la fois par un faisceau pompe (Argon, 514 nm, 500mW au maximum) et un faisceau sonde (HeNe, 633 nm, 10 mW). Le principe du dispositif expérimental est représenté en figure 26. Les focales des objectifs sont respectivement de 10 cm pour l'HeNe et de 2 cm pour l'Argon. Trois filtres réjecteurs pour le vert et bande étroite pour le rouge nous assure un rapport signal sur bruit suffisant pour une première approche.

Pour des raisons d'encombrement mécanique, l'angle d'incidence du faisceau sonde HeNe est d'environ  $30^\circ$ . Le faisceau pompe est utilisé en incidence normale. Le faisceau réfléchi par l'échantillon est essentiellement rediffusé par l'objectif 2 et sa monture mécanique. La lumière parasite à 514 nm a donc un niveau important. Cependant, cette lumière est éliminée par les filtres devant le détecteur. Au niveau de l'échantillon, seul le faisceau focalisé joue un rôle sur l'échauffement. Les mesures sont réalisées avec une détection synchrone. La fréquence de modulation peut varier entre quelques Hz et quelques centaines de kHz si nécessaire. Le choix des objectifs 1 et 2 permet d'obtenir des surfaces éclairées d'au mieux  $250\text{ }\mu\text{m}$  pour le faisceau rouge et  $50\text{ }\mu\text{m}$  pour le faisceau vert. Il faut noter que ces objectifs ne sont pas optimisés pour les conditions d'utilisation. Toutes les mesures sont réalisées dans le plan d'incidence. Les angles sont repérés par rapport à la normale à l'échantillon.

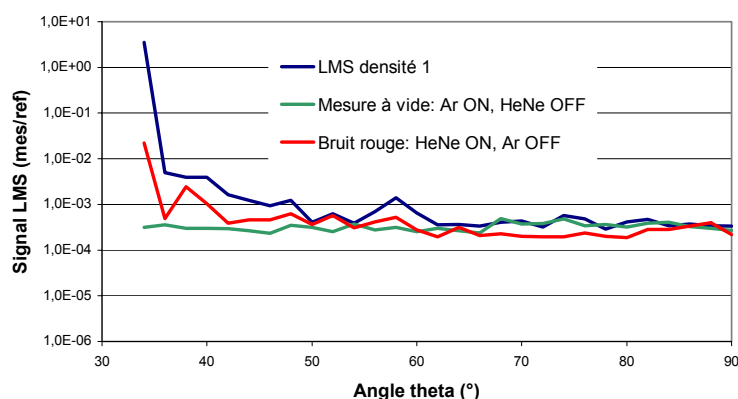
Une voie de référence est toujours prélevée sur le montage. Les mesures de diffusion classiques sont étalonnées grâce à la mesure d'un échantillon Lambertien. Ici, il s'agit d'une diffusion induite par l'échauffement lié au faisceau pompe. Les mesures ne pourront donc pas être étalonnées de la manière classique. Nous présenterons simplement les résultats comme le rapport de la tension mesurée sur la voie de mesure (signal HeNe) par la tension mesurée sur la voie de référence (signal Argon). Les valeurs obtenues sont sans unité.

Un exemple de résultat obtenu sur un verre Schott de densité  $10^{-2}$ , est donné en figure 28. Le domaine angulaire mesuré est de  $[35^\circ, 90^\circ]$ , après le faisceau réfléchi sonde, la fréquence de modulation est de 92 Hz. On peut évaluer ici deux niveaux de bruit, en présence de l'échantillon : le bruit en présence de faisceau pompe sans le faisceau sonde, et le bruit en l'absence de faisceau pompe avec le faisceau sonde.

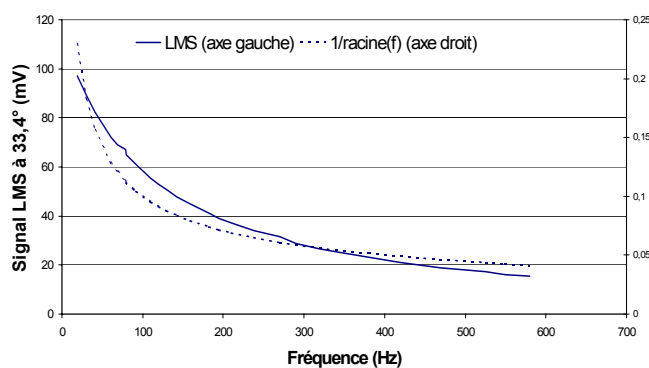
On note que le signal est relativement proche du niveau de bruit, représenté par la mesure à vide. Les mesures pour un angle de diffusion supérieur à  $50^\circ$  semblent difficiles dans ces conditions. Aux petits angles, les niveaux obtenus sur l'échantillon sont toutefois significatifs.

L'origine thermique du signal obtenu est vérifiée en figure 29 ; cette vérification consiste à observer l'évolution du signal en fonction de la fréquence de modulation du faisceau pompe. La puissance du laser pompe est mesurée grâce à la voie de référence, dont on a vérifié la linéarité. Le signal est mesuré à angle fixe (ici  $33^\circ$  par rapport à la normale).

Le signal suit une variation en  $1/\sqrt{f}$  avec la fréquence de modulation, ce qui permet de valider l'origine thermique de ce signal, dans le cas d'une absorption spatialement uniforme. On exclut ainsi la possibilité d'une fluorescence des filtres insérés sur le montage, ainsi que de l'échantillon. Nous avons également testé la répétabilité des mesures, qui est satisfaisante.



**Fig. 28. Evolution du signal de diffusion induite sous flux en fonction de l'angle de collection.**



**Fig. 29 : Evolution du signal en fonction de la fréquence de modulation du faisceau pompe**

Pour aller plus loin dans les investigations avec ce dispositif expérimental à fort potentiel, et s'intéresser notamment à des matériaux moins absorbants, il faudrait gagner deux décades sur le rapport signal sur bruit. Pour cela il est nécessaire de disposer d'un laser pompe plus puissant, d'un dispositif permettant une focalisation du faisceau pompe sur quelques microns, et d'une détection optimisée. Ces modifications n'ont pas encore été réalisées faute de financement et de surcharge de travail sur le diffusomètre de l'équipe.

### **I.5.5. Microscope photothermique couplé au test d'endommagement laser**

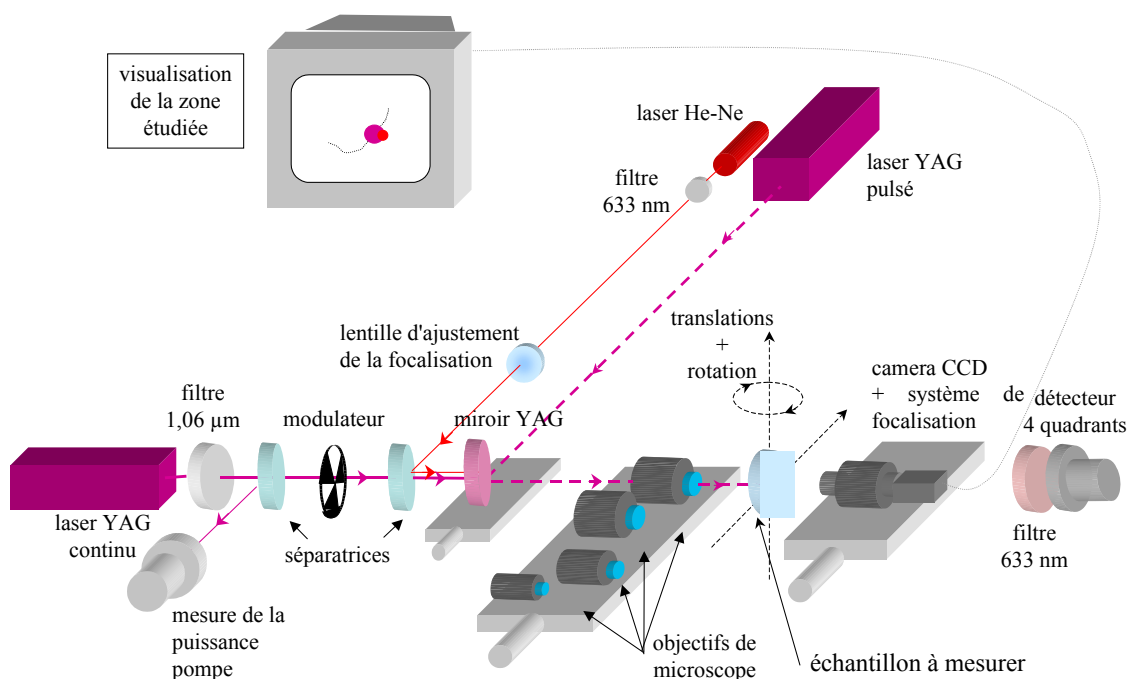
Le microscope photothermique (fig.30) développé à l'Institut Fresnel, est décrit en détail dans la thèse d'Annelise During<sup>37,38</sup>. Le faisceau pompe est un laser continu YAG 1064nm modulé à des fréquences variant du hertz à quelques khertz. Ce faisceau est focalisé sur la surface, le diamètre de la zone éclairée est de la taille de la longueur d'onde. Le

faisceau sonde (HeNe) traverse le même objectif. La résolution spatiale a été contrôlée sur des mires comportant un motif de périodicité  $2\mu\text{m}$  (plots absorbants de  $1\mu\text{m}$ , espacé de  $1\mu\text{m}$ ).

En ce qui concerne la détection de particule unique, la limite de détection est aujourd'hui donnée par la résolution des platines de translation en place, soit  $0,1\mu\text{m}$ . Des billes isolée de  $100\text{nm}$  de diamètre sont aujourd'hui couramment observées avec un rapport signal sur bruit de 8. Les modélisations réalisées montrent qu'il est possible de détecter des particule de quelques nanomètres, expérimentalement cette limite peut être atteinte :

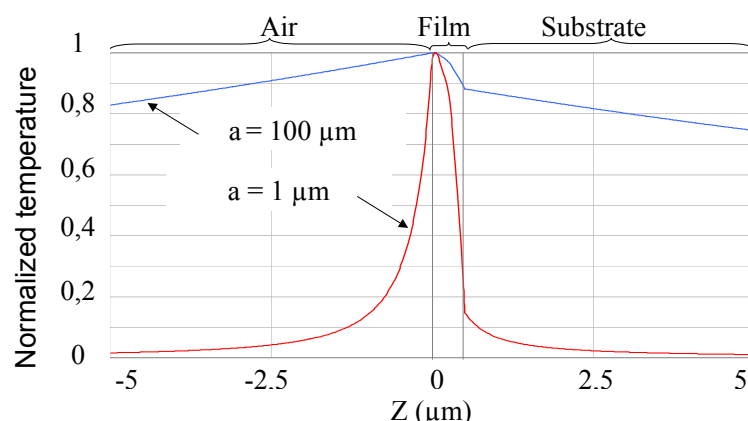
- en installant des platines piézo-électriques permettant une meilleure résolution spatiale
- en augmentant la fréquence de modulation pour augmenter le rapport signal sur bruit
- en diminuant la longueur d'onde, ce qui permettra de focaliser plus fortement le faisceau pompe et permettra de se placer près de la fréquence plasmon des nano-billes métalliques dans la silice.

Outre la haute résolution du microscope photothermique, l'utilisation d'un objectif de microscope pour focaliser le faisceau induit une profondeur de champ très faible, ce qui rend la technique très sensible à la surface en évitant l'intégration de l'absorption de volume, comme dans le cas d'un faisceau d'une centaine de microns. La figure 31 illustre ce propos en représentant la zone chauffée, respectivement pour un faisceau de  $100\mu\text{m}$  et de  $1\mu\text{m}$ .



**Fig. 30 : Dispositif expérimental du microscope photothermique couplé au test d'endommagement laser 1064nm.**



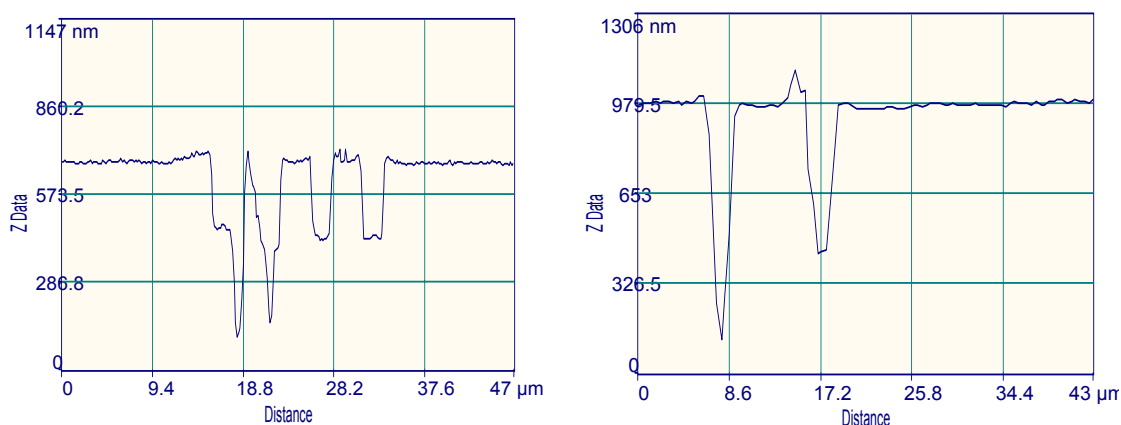


**Fig. 31 : Distribution de la composante modul e de la temp rature, en fonction de la profondeur dans l' chantillon pour des tailles de faisceaux pompe de 1 m et 100 m.**

## **I.6. Etude du ph nom ne d'initiation de l'endommagement sur des  chantillons tests de silice contamin s artificiellement**

### **I.6.1. Cas d'une couche mince de silice non contamin e artificiellement**

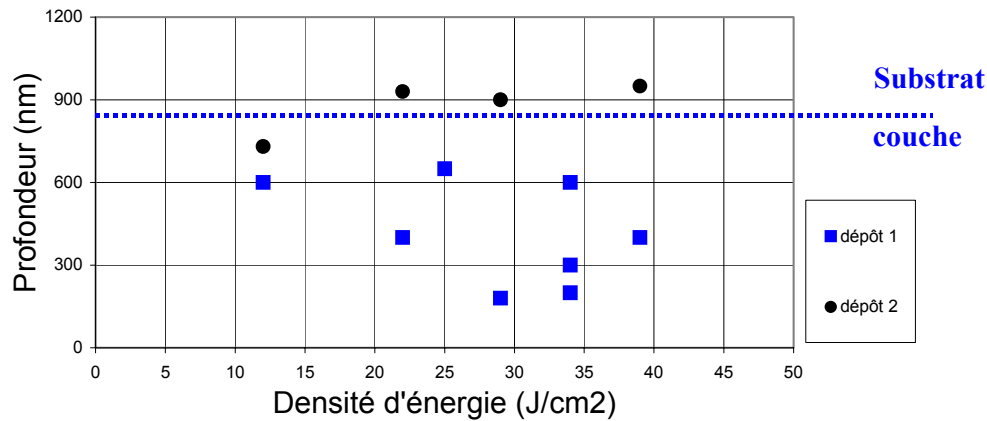
Dans le cas d'une couche mince d pos e par  vaporation classique, nous avons d j   voqu  au chapitre I.3, la mise en  vidence de sites privil giant la rupture gr ce aux observations des morphologies de surface par microscopie   force atomique. Des profils AFM repr sentatifs d'un  chantillonnage de 20 images r alis es sur deux zones distinctes d'une surface de silice sont repr sent s figure 32.



**Fig. 32 : Profils r alis s par microscopie   force atomique de crat res induits par irradiation laser   1064nm sur une couche de silice d pos e par  vaporation classique.**

Ces morphologies confirment le caract re al atoire de cette initiation sous le faisceau, et sa totale ind pendance avec d' ventuels points chauds dans le profil spatial du faisceau

incident. Pour aller plus loin dans le diagnostic de ces sites, nous avons réalisé un suivi de ces « trous » dans la silice en fonction de l'énergie incidente. Il a fallu pour cela effectuer une étude quantitative de la profondeur des cratères par microscopie à force atomique.



**Fig. 33. Evolution de la profondeur des cratères dans la silice en fonction de la densité d'énergie d'irradiation pour deux types de dépôt.**

Les mesures ont été effectuées pour deux conditions de dépôt différentes (fig.33). L'interface entre la couche mince déposée et le substrat est représentée par un trait pointillé. On constate que la profondeur des trous est indépendante de l'énergie d'irradiation. Ce résultat révèle que **l'initiation s'effectue pour une énergie donnée** (12 J/cm<sup>2</sup> dans notre cas), et qu'elle conduit au même type d'endommagement de surface indépendamment d'un apport d'énergie supplémentaire. La notion de centre précurseur, affecté d'une valeur de seuil, telle qu'elle est présentée dans le modèle (§ I.3) semble être ici vérifiée expérimentalement.

En ce qui concerne la profondeur des trous, le résultat dépend des conditions de dépôt. Pour le dépôt 1 la profondeur des trous reste contenue de manière aléatoire dans la couche, alors que pour le dépôt 2, la profondeur se situe au niveau de l'interface couche substrat. On peut imaginer dans ce dernier cas une présence de précurseurs distribués préférentiellement à l'interface.

Les résultats obtenus pour une couche de silice montrent clairement la présence de sites initiateurs de l'endommagement, ainsi que leur localisation dans la couche. Cependant nous ne savons rien de la nature exacte de ces sites, et de leurs tailles réelles. Il est dans ces conditions difficile, d'appréhender les mécanismes responsables de cette initiation.

Pour ces raisons nous avons décidé de nous intéresser à l'étude d'échantillons tests, dans lesquels des défauts de nature, de taille et de densité contrôlées ont été enterrés entre deux couches de silice. Il faut noter ici que cette démarche originale de simulation de centres

précurseurs par inclusions d'or a été initiée et est poursuivie par Papernov<sup>39,40</sup>. Nous avons donc voulu dans nos conditions de test spécifiques et avec de nouveaux outils de diagnostic, contribuer à la compréhension de l'initiation par la voie des échantillons artificiels.

Cette étude a été réalisée en collaboration étroite avec le CEA Bruyère le Châtel(DIF/DPTA), le CEA CESTA/DLP, et pour la réalisation des échantillons avec le CEA- Grenoble/LETI et le LASIM (Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire –Lyon).

## I.6.2. Qualification des échantillons contaminés artificiellement

Des échantillons spécifiques ont été réalisés comme nous l'avons dit, pour simuler la présence de précurseur dans une matrice de silice. L'or a été choisi comme précurseur d'une part pour des raisons de commodité de dépôt, tel que la très faible tendance à l'oxydation, et d'autre part car la piste de centres précurseurs absorbants a dans un premier temps été privilégiée.

Deux gammes de taille de billes ont été réalisées par des techniques de dépôt différentes :

- Les échantillons de silice réalisés au LETI contiennent des billes d'or dont le diamètre varie entre **400nm et 800 nm**, recouvertes d'une couche de silice d'épaisseur égale à 2, 5 et 10  $\mu\text{m}$ . Les densités surfaciques sont de quelques individus pour  $100\mu\text{m}^2$ .
- Les échantillons LASIM (Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire – Lyon) possèdent des inclusions d'or de diamètre de l'ordre de 3 nm. L'épaisseur de la couche de silice qui les recouvre est de 130 nm. La densité des inclusions d'or dans les échantillons varie entre 100 et 1 défauts pour  $1\mu\text{m}^2$ .

Pour ces deux types d'échantillons (Fig. 34), l'emploi de colloïde a été évité, afin de ne pas polluer les particules d'or par des résidus de surfactants qui pourraient compliquer la compréhension et la modélisation des résultats expérimentaux.

Les tailles des échantillons sont respectivement de:  $100\text{ mm}^2$  pour le LASIM et de  $1960\text{ mm}^2$  pour le LETI.

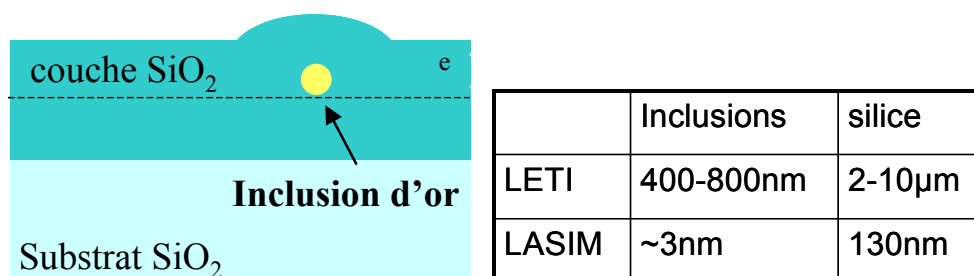
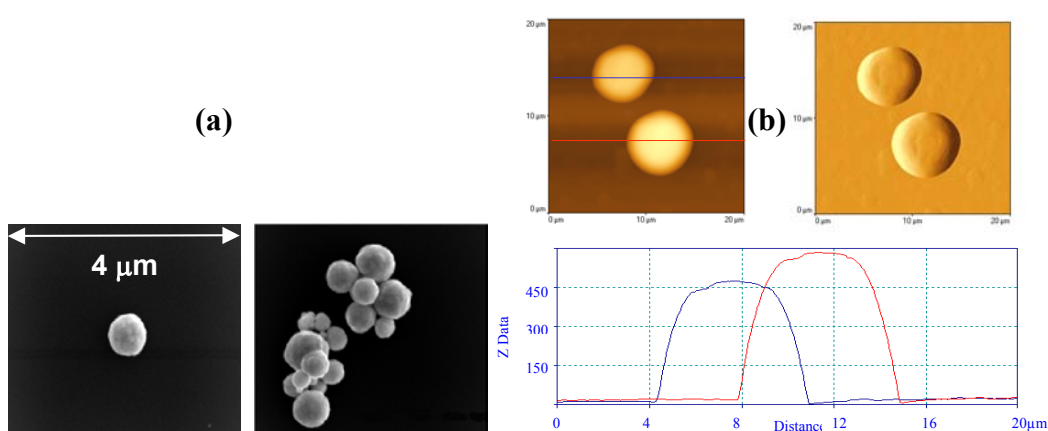


Fig. 34 : Représentation schématique des échantillons tests LETI et LASIM

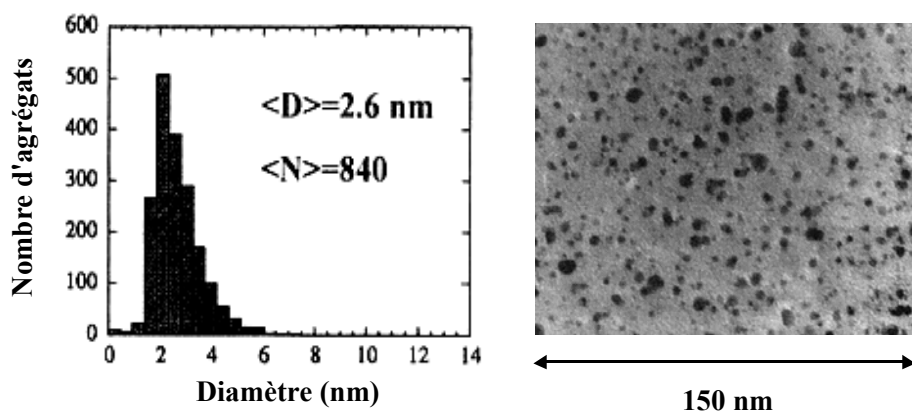
- **Cas des échantillons LETI :**

Une étude statistique réalisée aux microscopes Nomarski et à force atomique<sup>41</sup> nous a permis de réaliser une distribution en taille et densité des billes dans les différents échantillons. La figure 35 montre un exemple de dôme observé en surface de silice. Ces dômes répliquent les défauts sous-jacents. Les hauteurs des dômes donnent directement la taille de la particule, alors que la largeur nous informe sur l'épaisseur de la couche déposée sur la bille. Les hauteurs mesurées sont conformes aux spécifications initiales avec des tailles autour de 600nm.



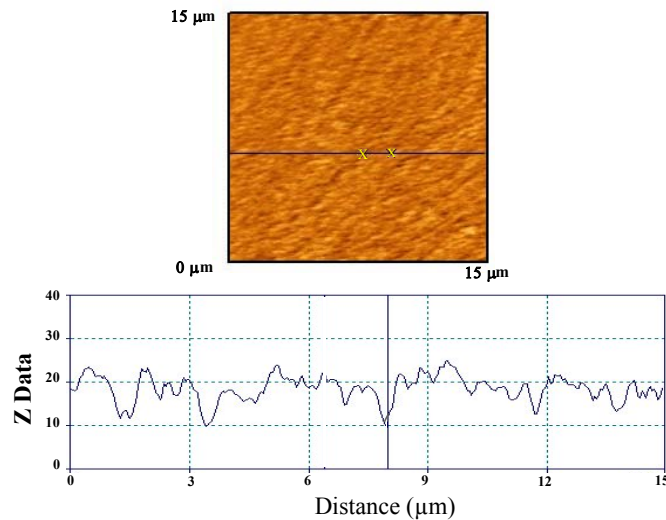
**Fig. 35 :** Image par microscopie électronique à balayage d'une particule d'or isolée et d'agrégats (a), réplique de particules d'or isolées observées en surface par microscopie à force atomique

- **Cas des échantillons LASIM :**



**Fig. 36.** Image par microscopie électronique en transmission donnant la distribution en diamètre moyen  $\langle D \rangle$  et le nombre moyen d'atomes par agrégat  $\langle N \rangle$ .

L'étude de taille et de distribution est ici impossible avec le microscope optique car on est en limite de résolution. Au microscope à force atomique, les 4 nm de diamètre des billes d'or sont inférieurs à la rugosité de la couche déposée et donc indétectables.



**Fig. 37 : Profil AFM de la rugosité de surface sur échantillon LASIM**

### **I.6.3. Résultats des irradiations laser sur les échantillons tests**

- **Irradiation laser sur les échantillons contenant des inclusions de 4nm**

Lorsque l'échantillon est irradié, les premiers endommagements observables en surface sont identifiés comme étant des délaminations (fig. 38). Le profil montre que le substrat a été légèrement attaqué (de l'ordre de 20 nm).

Dans le cas de cet échantillon, la trop forte densité d'agrégats ( $100 \text{ défauts}/\mu\text{m}^2$ ) ne permet pas de discriminer l'effet d'une nano-particule unique. La distance qui sépare les agrégats du substrat (130 nm) est du même ordre que la distance moyenne entre deux agrégats (100 nm), ce qui semble favoriser les effets collectifs. Pour des échantillons contenant des densités plus faibles  $1 \text{ défaut}/\mu\text{m}^2$ , réalisée lors d'une seconde campagne d'étude, il a été possible d'observer l'initiation créée sur des sites isolés d'alumine (fig. 39). On peut également noter dans cette figure que pour des irradiations de  $13 \text{ J}/\text{cm}^2$ , on révèle des défauts provenant de la couche de silice. Dans l'image de droite, à plus fort grossissement, les endommagements initiés par l'alumine sont visibles. On notera enfin que les valeurs de claquage obtenues sur les nano-centres artificiels sont élevées par rapport à celles obtenues dans le cas de l'or. Ces valeurs élevées sont certainement liée à l'aspect diélectrique de ces précurseurs.

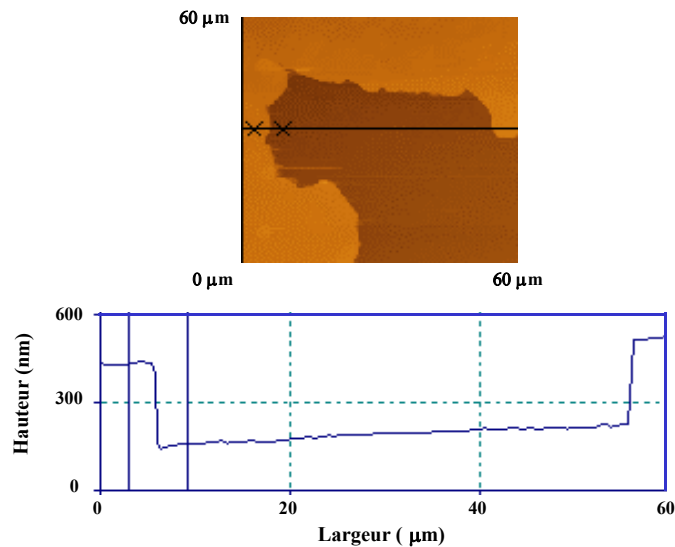


Fig. 38 : Profil AFM d'une zone délaminée après irradiation laser à 355nm,  $F=2\text{J}/\text{cm}^2$

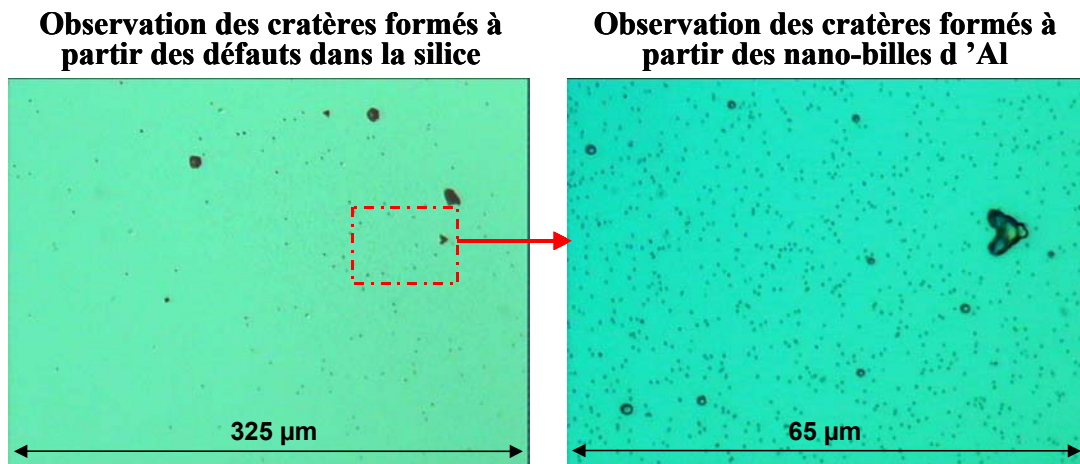


Fig. 39: Image Nomarski d'un échantillon test (bille d'alumine de 4nm) de densité 1 défaut/ $\mu\text{m}^2$ ) irradié à 355nm,  $F=13\text{J}/\text{cm}^2$

Parallèlement à l'étude morphologique des endommagements, une **analyse des éjections de matière pendant irradiation** a été réalisée en collaboration avec l'Argonne National Laboratory de l'Université de Chicago. Il s'agit précisément de détecter par spectrométrie de masse à temps de vol, les éléments émis sous irradiations multiples<sup>42</sup>.

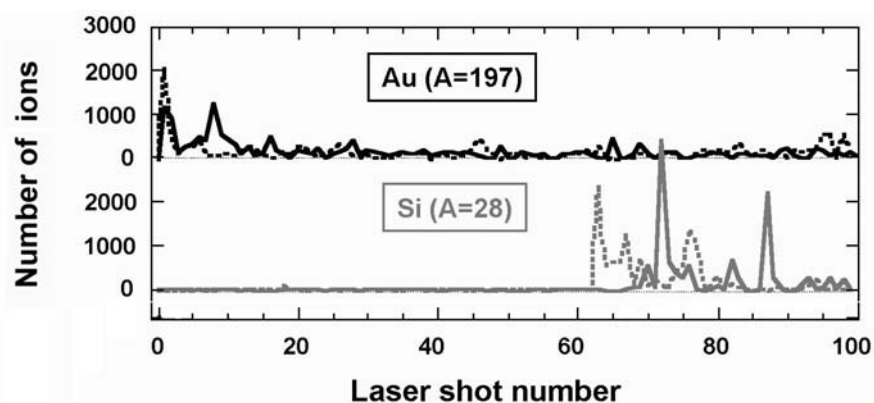


Fig. 40 : Evolution de l'émission d'ions Au et Si en fonction du nombre de tirs ( $\lambda=355\text{nm}$ ,  $F=5\text{J/cm}^2$ )

La figure 40 montre l'évolution de l'émission collectée par le spectromètre au cours de l'irradiation. On peut noter que dans les premiers tirs, l'or quitte le matériau alors qu'il n'apparaît pas d'endommagement notable sur la surface. Entre le vingtième tir et le soixantième tir, le spectromètre de masse ne détecte pas de trace d'or ou de silice. On suppose que cette phase représente le moment où la **silice environnante se modifie et devient absorbante** (résultat corroboré par ceux obtenus en photothermie)<sup>43</sup> (fig. 41). Après cette phase de « transformation », l'endommagement visible se crée et l'on voit apparaître la silice éjectée au spectromètre de masse.

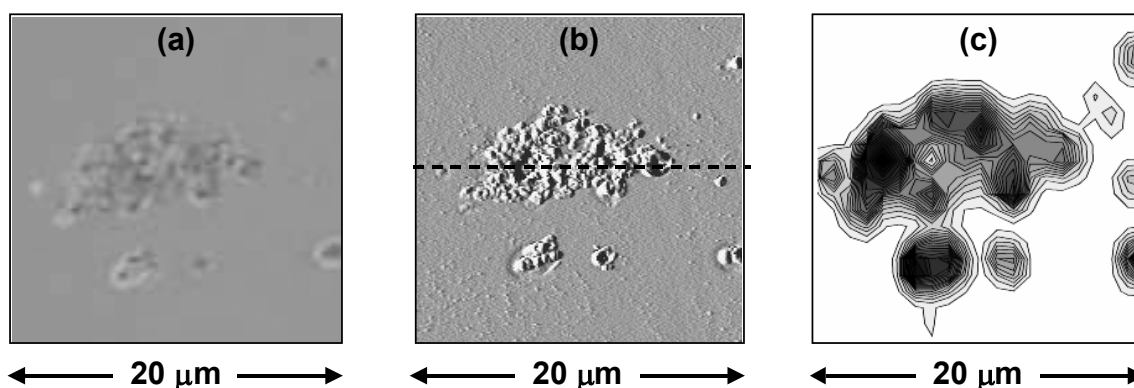


Fig. 41 : Observation d'un endommagement ( $355\text{nm}$ ,  $XX\text{J/cm}^2$ ) non catastrophique au microscope Nomarski (a) à force atomique (b) et en microscopie photothermique (c).

La figure 41a,b représente une zone irradiée non encore fortement perturbée, la morphologie de la surface commence toutefois à se transformer. Les intensités obtenues par cartographie d'absorption (fig. 41c) réalisée au microscope photothermique révèlent dans cette zone une absorption extrêmement importante ( $10^{-2}$  à comparer à  $10^{-6}$  en dehors de la

zone.) Cette forte augmentation de l'absorption à 1064nm ne pouvant pas être attribuée aux seules particules d'or, peut être interprétée comme une transformation de la silice durant la migration de l'or sous flux se produisant certainement entre les 20<sup>ème</sup> et 60<sup>ème</sup> tirs. Cette silice autour de l'inclusion devenant également très absorbante dans l'UV, constitue alors une zone privilégiée pour la rupture. La silice transformée joue le rôle de région précurseur pour l'endommagement. Afin de diminuer les effets collectifs de l'or les prochaines expériences menées à Argonne par spectrométrie à temps de vol seront réalisées avec des densités de particules 100 fois plus faibles (§II.2)

- **Irradiation sur les échantillons contenant des inclusions de 600nm**

Il est évident que des particules de tailles supérieures à quelques centaines de nanomètres ne simulent pas le cas réel de défauts dans la silice, de taille suspectée être seulement de quelques nanomètres. Néanmoins les observations autour d'une bille isolée de taille nanométrique s'avèrent aujourd'hui encore difficiles. L'observation des modifications induites sous seuil d'endommagement est pour cette raison réalisée sur des billes de diamètre plus important. Dans tous les cas les résultats nous donneront des informations sur les mécanismes de pré-endommagement. D'autre part les résultats obtenus pour ces tailles d'inclusions seront exploitables dans le cas des couches minces, où les défauts de tailles microniques constituent souvent une limitation à la tenue au flux.

#### **- Cas des endommagements visibles en surface**

Pour des densités d'énergies supérieures à quelques joules par centimètre carré à 355nm, l'on observe systématiquement des endommagements en surface de la silice. La figure 42 montre les résultats obtenus après des irradiations à 355nm (5ns) réalisées en faisceau focalisé (8µm) (fig. 42a,b) et en faisceau large (700µm) (fig.42c). Il est clair que dans les deux cas l'endommagement est initié par les centres artificiels : d'une part car la morphologie révèle une forme de cratère présentant un point d'amorçage visible, et d'autre part l'énergie nécessaire à cet endommagement est approximativement 20 fois plus faible que le seuil de la couche de silice testée en dehors des billes (tableau 1).

En ce qui concerne l'influence de la taille du faisceau d'irradiation, un effet collectif peut être observé lors de l'utilisation d'un large faisceau (fig. 42c). L'utilisation d'un faisceau focalisé, permet de nous affranchir de ce problème (fig. 42a,b). D'autre part dans la



configuration petit faisceau, comme nous l'avons décrit au chapitre I.2.4, il est plus facile d'accéder à l'énergie exacte vue par l'inclusion d'or.

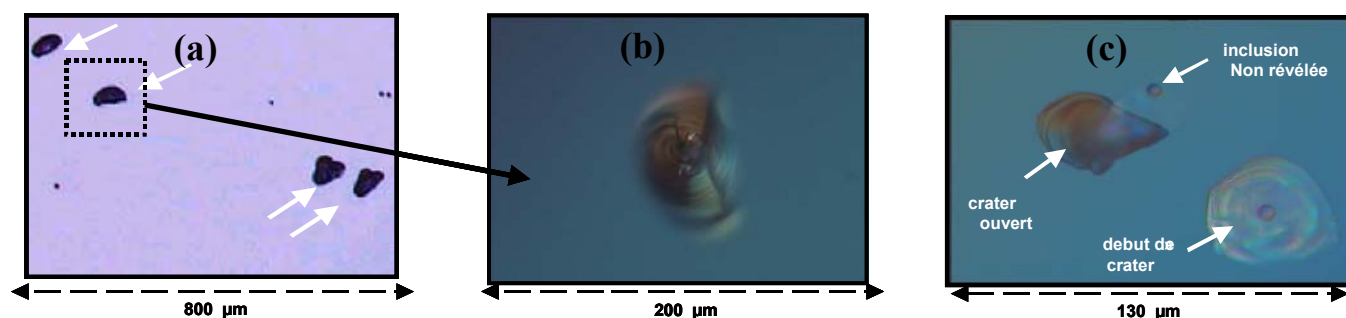


Fig. 42 : Image Nomarski d'endommagement initié par les inclusions d'or, dans le cas d'irradiations focalisés (8μm) sur la bille (a, b) et dans le cas large faisceau c(700μm).

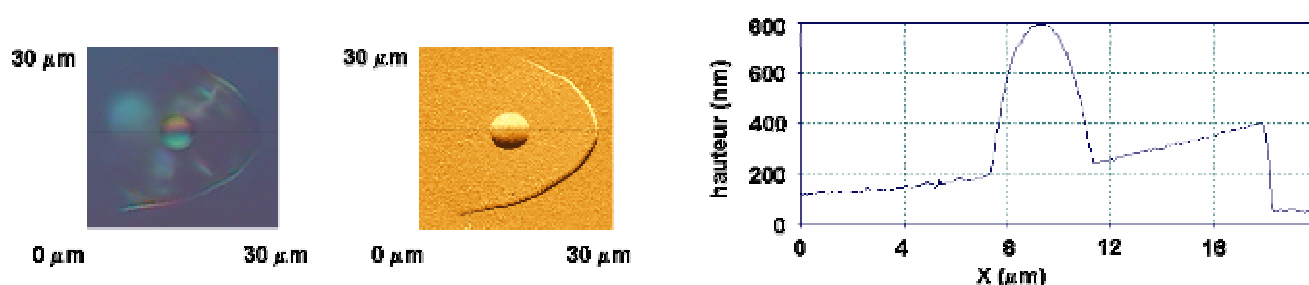


Fig. 43 : Image Nomarski et AFM de la plus petite modification de surface détectable après irradiation.

La Figure 43 représente le plus petit endommagement visible en surface ; au début la couche se soulève, crée une fente puis un cratère avec éjection de matière.

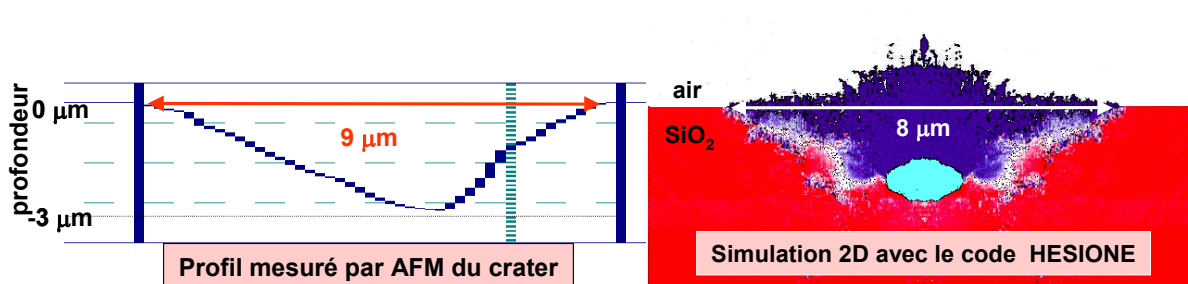


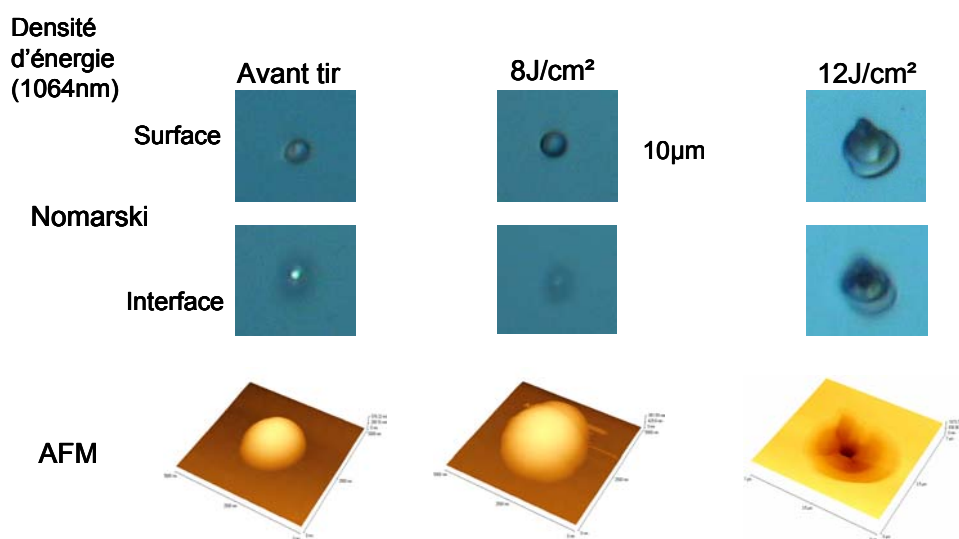
Fig. 44 : Comparaison entre expériences et simulations à 351nm pour  $F = 6 \text{ J/cm}^2$ ,  $E = 10 \text{ μm}$

Le code Hesione développé au CEA <sup>44</sup> est un code hydrodynamique permettant de simuler la propagation du cratère à partir de l'initiation d'un endommagement.

La figure 44 montre sur la gauche le profil AFM d'un endommagement dans l'UV à  $6 \text{ J/cm}^2$ . Le code Hesione à droite simule ce cratère en utilisant les mêmes paramètres expérimentaux. On peut constater que ce code est assez fidèle pour ces tailles de particules, la largeur du cratère obtenue étant quasiment identique à celle observée expérimentalement.

**- Cas des endommagements invisibles en surface : mise en évidence d'une situation de « pré-endommagement ».**

Dans cette étude on effectue des irradiations lasers sur un ensemble de billes de tailles voisines afin de réaliser une statistique sur les observations. On irradie de manière localisée 10 billes par densité d'énergie. Les résultats des impacts sont observés après le tir au microscope Nomarski, en surface et sous la première couche de silice, à l'endroit où se trouve l'inclusion métallique (on focalise pour cela le microscope dans le volume). La figure 45 illustre les trois cas rencontrés : avant l'endommagement la bille d'or est nettement visible au Nomarski à l'interface, après une irradiation sous seuil le contraste Nomarski a chuté, révélant une modification induite sur la bille sans pour autant affecter la surface. La troisième image illustre les résultats de l'impact pour une valeur supérieure au seuil bas, la surface est cette fois modifiée. Si l'on conserve le critère d'endommagement évoqué dans le document, ce critère est respecté pour le cas 3. Cependant une modification à l'intérieur du matériau s'est produite sous ce seuil. Nous qualifierons ici cette situation de **pré-endommagement**, en ce sens où elle aboutira à un endommagement en surface. Bien entendu la notion de seuil peut ici être discutée. Nous définirons donc un seuil d'endommagement ( $T_s$ ) comme précédemment et un seuil de pré-endommagement ( $T_p$ ). Les valeurs de ces seuils déterminées par l'observation Nomarski sont données dans le tableau 1.  $T_c$  représente la valeur de tenue au flux de la couche, testée entre les billes. Les résultats obtenus à 1064nm et 355nm sont de même nature, seuls les valeurs de seuil changent (tableau 1).

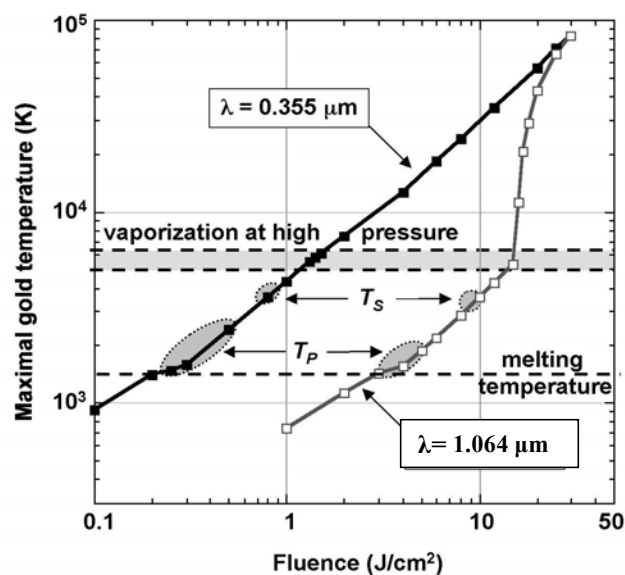


**Fig. 45 : Observation au microscope Nomarski et à force atomique d'une situation de pré-endommagement pour une irradiation sous seuil à 1064nm**

	$T_P$ (J/cm <sup>2</sup> )	$T_S$ (J/cm <sup>2</sup> )	$T_C$ (J/cm <sup>2</sup> )
$\lambda = 355$ nm	$\sim 0.4$	$0.8 \pm 0.1$	$20 \pm 2$
$\lambda = 1064$ nm	$\sim 4$	$9 \pm 1$	$50 \pm 2$

**Tableau 1 : Valeurs de tenue au flux des couches (Tc), d'endommagement (Ts) et de pré-endommagement testé sur un échantillon de 10 billes à 355nm et 1064nm**

Nous avons pu confronter ces résultats expérimentaux aux prédictions théoriques fournies par le code DELPOR<sup>45,46</sup> développé au CEA Bruyère-Le-Châtel. Ce code permet d'évaluer la température locale en tenant compte du maximum de paramètres afin de rendre compte au mieux du cas réel. Les simulations présentées figure 46 montrent clairement que pour les deux longueurs d'onde notre situation de pré-dommage se trouve dans la région où l'on attend une fusion de la bille dans la matrice de silice. On peut remarquer que les énergies utilisées sont très loin de pouvoir mettre en jeu un processus plus violent d'évaporation, même lorsque l'endommagement devient clairement visible en surface (Ts).



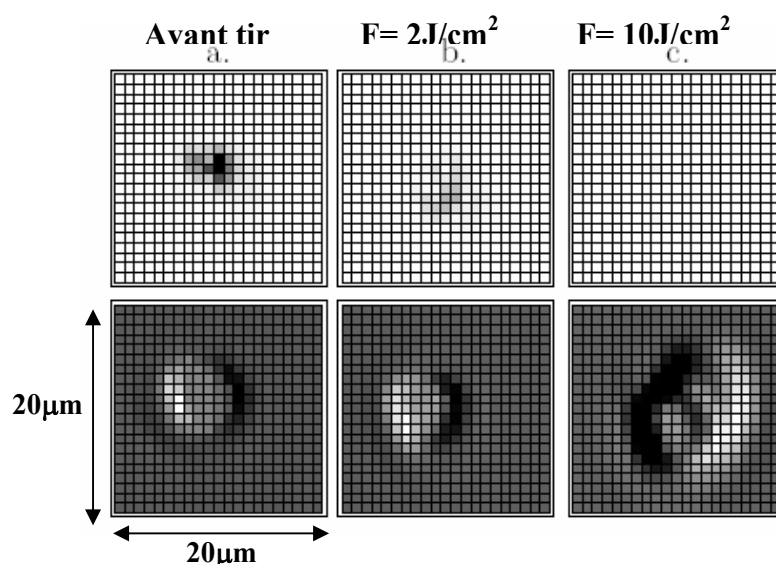
**Fig.46 : Prédiction de l'évolution de la température sur la bille d'or d'après le code Delport.**

Afin d'affiner la détection de la zone de pré-endommagement, nous avons décidé d'entreprendre une étude photothermique in situ grâce au dispositif présenté figure 31 du chapitre I.5.5.

**Il est en effet possible grâce à l'adjonction du laser d'endommagement au microscope photothermique, d'isoler une bille d'or et d'observer son évolution en fonction de l'énergie d'irradiation.**

Un exemple de résultat obtenu est présenté figure 47, le signal photothermique décroît lorsque l'irradiation augmente (a, b haut). Le niveau de bruit est à  $10^{-5}$  alors que le signal sur la bille avant irradiation est à  $10^3$  fois plus élevé (a) et 10 fois plus élevé (b) après une irradiation à  $2\text{J}/\text{cm}^2$ . On peut suivre l'intégrité du dôme en surface grâce à une mesure simultanée de réflectivité 2D. En c le signal photothermique a disparu alors que la morphologie de surface s'est modifiée (endommagement de surface), l'or dans ce cas a du être éjecté.

On notera que la technique PTM pour détecter l'endommagement est non seulement plus sensible que l'observation au Nomarski mais elle permet également de réaliser une étude quantitative de la décroissance du signal photothermique en fonction de la densité d'énergie.

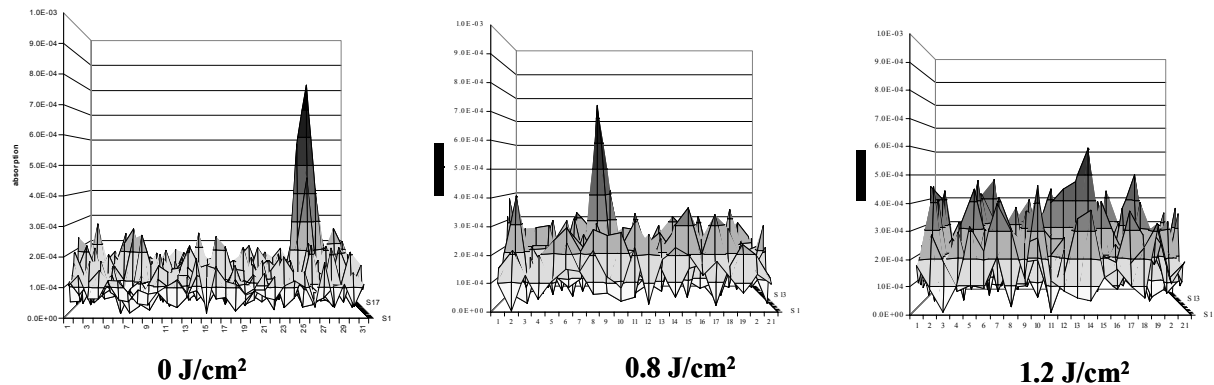


**Fig.47 : Evolution du signal photothermique (haut) et de la réflectivité (bas) de surface en fonction de l'énergie d'irradiation à 1064nm.**

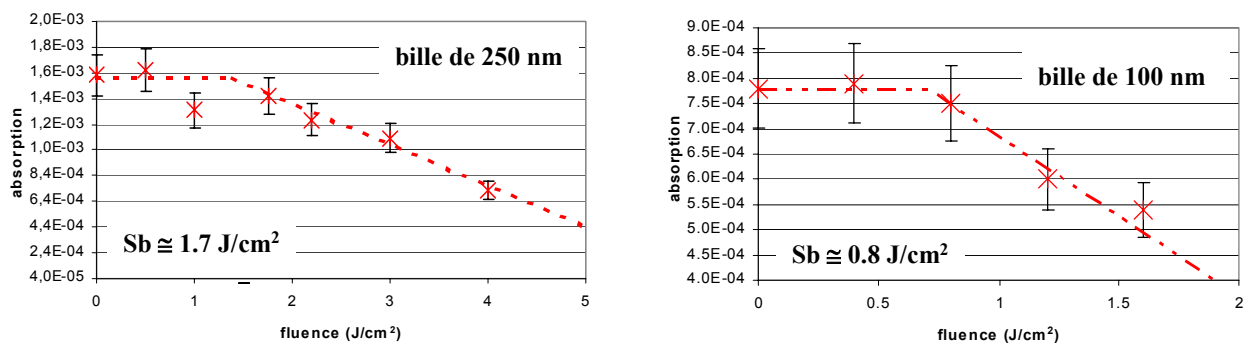
Les observations réalisées sur de nouveaux échantillons de taille 100-200nm, montrent encore d'avantage la plus-value de l'utilisation du microscope photothermique pour cette étude. En effet pour ces tailles il n'est plus possible de visualiser l'évolution des billes au microscope Nomarski, le contraste étant insuffisant.

Les figures 48 et 49 montrent les premiers résultats obtenus sur des inclusions de 100 et  $250\text{nm}$ <sup>47</sup>. Il faut noter que le rapport signal sur bruit pour une bille de 100nm est d'un facteur 4. Les mesures réalisées sur ces billes montrent que le seuil d'endommagement dépend de la taille de la bille,  $0.8\text{J}/\text{cm}^2$  pour 100nm et  $1.7\text{J}/\text{cm}$  pour 250nm. La valeur du seuil de pré-

endommagement est donnée, dès lors que le signal photothermique commence à chuter (Fig.49), étant donné les barres d'erreur la précision est voisine de  $0.1 \text{ J/cm}^2$ .



**Fig. 48 : Evolution du signal photothermique en fonction de la densité d'énergie incidente dans le cas d'une bille d'or isolée de 100nm irradiée à 1064nm.**



**Fig. 49 : Evolution du seuil de pré-endommagement en fonction de la taille de la bille**

## **I.7. Effet des tirs cumulés sur le seuil d'endommagement laser : conditionnement et fragilisation des composants.**

L'étude liée au comportement du matériau sous seuil d'endommagement, comme on vient de le voir dans le chapitre précédent, constitue une voie de recherche développée au sein de l'équipe MAP2. Ces études permettent d'une part de tenter d'appréhender **l'initiation de l'endommagement** et d'autre part d'observer le comportement du matériau soumis à des tirs répétés à basse énergie. En effet, en fonction des matériaux on peut assister à une **amélioration** de la tenue au flux après une pré-irradiation (**conditionnement**) ou au contraire une **fragilisation** du matériau. Dans les deux cas l'observation détaillée de l'évolution de ces matériaux nous informe sur les mécanismes précurseurs de l'endommagement. Les premières

études réalisées sur des verres optiques ont permis de déduire une loi de fragilisation propre à chaque matériau testé, permettant ainsi de livrer une estimation de la durée de vie du composant en fonction de l'énergie d'irradiation et du nombre de tirs.

### **I.7.1. Evolution de la tenue au flux du volume de la silice sous irradiations multiples à 1064nm et 355nm**

Lors de tirs répétés à 1064nm et 355nm on observe une fragilisation du matériau ; cette diminution de tenue dans la silice est un phénomène connu, mais mal expliqué<sup>48</sup>. Pour spécifier ce comportement l'on trouve en général dans la littérature des seuils d'endommagement associés à un nombre de tir. Dans notre cas grâce à l'utilisation d'un petit faisceau nous pouvons révéler des inhomogénéités dans le matériau par le tracé de courbe de probabilité d'endommagement. Nous pouvons donc tracer ici les probabilités d'endommagement pour différents nombres de tirs. L'initiation d'un endommagement sur un défaut serait alors conditionnée par **un seuil dépendant du nombre de tir**<sup>49</sup>.

La probabilité d'endommagement calculé au chapitre I.3 (equ.4) peut donc prendre en compte le nombre de tir  $N$  si on remplace le seuil  $T$  par  $T(N)$  dans l'expression. Nous pouvons ainsi comme nous l'avons fait précédemment ajuster nos courbes de probabilité afin de définir la densité de défauts responsable du claquage ainsi que le seuil bas.

Les courbes obtenues figure 50 et 51 réalisées pour 1064 nm et 355nm, révèlent dans les deux cas une diminution significative du seuil en fonction du nombre de tir. Cette diminution est représentée figure 52 d'où l'on peut déduire une relation simple permettant d'évaluer la durée de vie d'une optique en fonction du nombre de tir.

En ce qui concerne les densités de défaut, elles semblent identiques dans le cas 1064nm (fig.50), ce qui suppose que ce sont les même défauts qui sont concernés par le processus de fatigue par tir répété. Par contre pour le cas 355nm (fig.51), il apparaît clairement une augmentation de la pente lorsque le nombre de tirs augmente. Ces résultats signifient que la densité de défauts en fonction du nombre de tir n'est plus constante comme c'était le cas à 1064nm. Il semblerait en effet que de nouveaux défauts soient créés tels que des centres colorés, ou que d'autres défauts intrinsèques soient révélés.<sup>50</sup>

Une étude du comportement des densités dans le cas 355nm en fonction de la fréquence de tir est en cours. En faisant varier ce paramètre on pourrait en effet espérer évaluer le **temps de relaxation** de ces centres, et ainsi optimiser la fréquence de tirs en fonction du matériau.

Pour aller plus loin dans la compréhension de ces mécanismes un diagnostic par spectrométrie de plasma in situ est en cours d'étude, afin de nous aider à détecter la nature chimique de ces centres (cf. partie II).

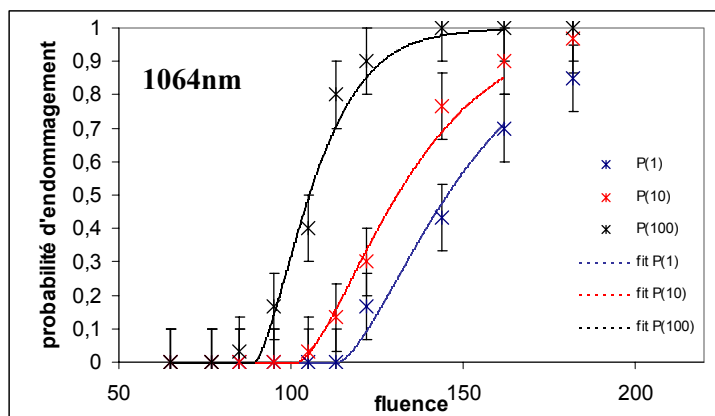


Fig. 50 : Evolution de la probabilité d'endommagement en fonction du nombre de tir à 1064nm.

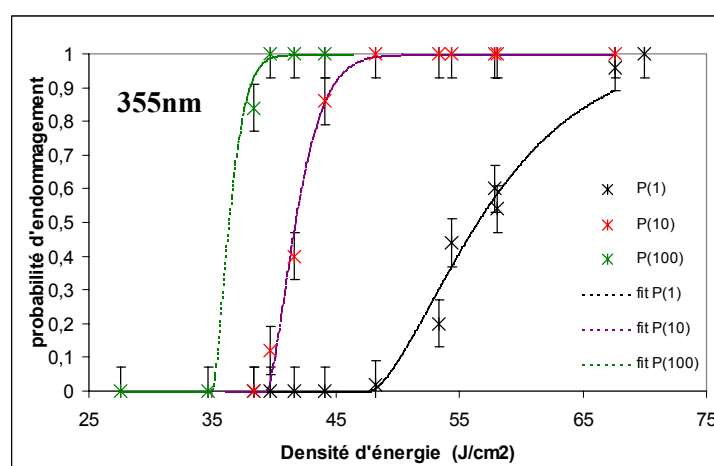


Fig. 51 : Evolution de la probabilité d'endommagement en fonction du nombre de tir à 355nm.

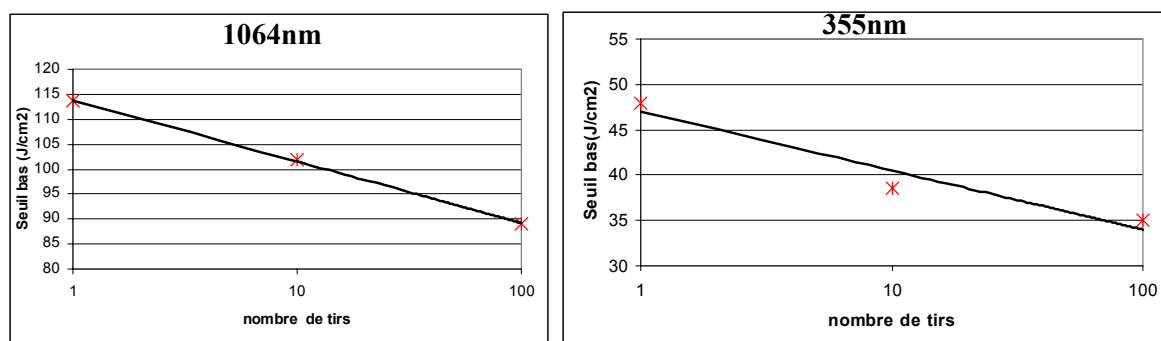


Fig. 52 : Evolution du seuil bas d'endommagement en fonctions du nombre de tirs à 1064nm et 355nm.

### I.7.2. Le conditionnement laser

Le but du conditionnement laser est d'améliorer la tenue au flux des matériaux par un protocole plus ou moins complexe et empirique de pré-irradiation. Ces pré-irradiations doivent avoir pour effet par exemple de modifier les défauts de surface afin d'en augmenter la tenue au flux par « recuit laser » ou de les éjecter. Plusieurs exemples montrent la faisabilité de ce type de procédé sur des couches minces et certains matériaux volumiques<sup>51, 52, 53</sup>. Nous avons mené dans ce sens des études pour le CEA-CESTA, dans le cadre du projet Mégajoule. Un rapport de fin d'étude décrit les résultats obtenus de manière détaillée<sup>54</sup>.

Afin d'irradier tout le matériau nous avons utilisé une procédure dite de « raster scan »<sup>1</sup> qui permet à partir d'un faisceau plus petit que l'échantillon d'irradier celui-ci de manière la plus uniforme possible. La figure 53 représente cette technique d'irradiation par recouvrement de gaussiennes. On comprend bien que dans le cas de faisceau de taille de dizaine de microns, ces procédures sont extrêmement longues.

Les procédures de conditionnement laser étant assez empiriques, plusieurs voies ont été simultanément explorées dans le cadre d'une action stimulée par le CEA CESTA pour projet mégajoule. Plusieurs paramètres de pré-irradiations ont été explorés par différents laboratoires telles que la longueur d'onde, la durée d'impulsion, le profil spatial et le taux de répétition. Une comparaison des différents résultats a été réalisée<sup>55</sup>. Nous ne présenterons ici que ceux obtenus à l'Institut Fresnel.

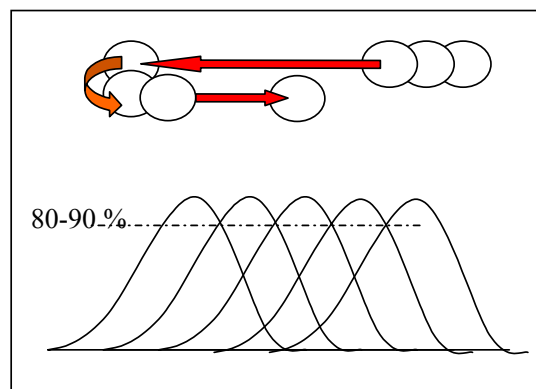


Fig.53 : Procédure d'irradiation de type « raster scan »



- **Calcul des paramètres relatifs à la procédure de pré-irradiation**

Le pas  $\Delta p$ , de balayage de l'échantillon, est calculé à partir de la taille du spot utilisé de telle sorte que le recouvrement des gaussiennes se fasse entre 80 et 90 % du maximum.

Le choix de la taille du spot ne peut pas se faire sans précautions. En effet, un raisonnement simpliste peut conduire à utiliser un faisceau le plus large possible afin de réduire au maximum la durée de l'expérience. Cependant, une cause possible d'endommagement peut être l'existence de phénomènes non linéaires dans la matière lorsque la puissance du faisceau dépasse une valeur critique. Or si nous voulons atteindre une densité d'énergie suffisante dans le cas d'un spot large, il faut nécessairement utiliser une impulsion ayant une puissance crête importante. Il faut donc éviter ce type de configuration en définissant une taille maximale à ne pas dépasser.

La puissance critique nécessaire à l'apparition de ces effets peut s'exprimer de la façon suivante :

$$P_c = \frac{\epsilon_0 \epsilon_L c \lambda^2}{2\pi \chi_3}$$

Où  $\epsilon_0$  est la permittivité du vide,  $\epsilon_L$  la partie linéaire de la permittivité relative du milieu,  $c$  la célérité de la lumière,  $\lambda$  la longueur d'onde et  $\chi_3$  le terme de non linéarité d'ordre 2.

Dans le cas de la silice, cette puissance critique est de l'ordre de 100 kW. Ainsi, pour une impulsion de 6 ns (cas du laser  $3\omega$ ), nous obtenons une énergie maximale à ne pas dépasser de

l'ordre de 600  $\mu$ J. La surface équivalente d'irradiation étant donnée par  $S_{eq} = \frac{\pi d^2}{8}$  (à  $1/e^2$ ),

nous obtenons une largeur maximale du spot à  $1/e^2$  de 96  $\mu$ m. Nous nous placerons donc à la limite afin d'avoir une campagne de conditionnement la plus rapide possible sans que l'on ait toutefois, l'apparition de phénomènes non linéaires pouvant endommager le matériau. Pour cela, nous utiliserons une lentille de focalisation donnant au niveau de l'échantillon un spot de largeur 95  $\mu$ m (largeur mesurée à  $1/e^2$ ).

- **Premiers résultats obtenus sur la silice Suprasil.**

Lors des tests réalisés à 355nm sur le suprasil en mode 1-on-1 et R-on-1 nous n'avons pas observé de différences significatives sur les valeurs de tenue au flux. De plus les résultats obtenus dans la partie I.7.1 tendent à révéler une fragilisation systématique de la silice sous

irradiations multiples. Néanmoins sous des conditions de test très spécifiques, nous avons tenté de « conditionner » le matériau Suprasil.

La figure 54 montre une légère diminution de la densité de dommage après la procédure de conditionnement, cependant il sera nécessaire de confirmer ces résultats. Il semble de plus que l'augmentation du nombre de passages augmenterait l'effet de conditionnement de manière sensible.<sup>56</sup>

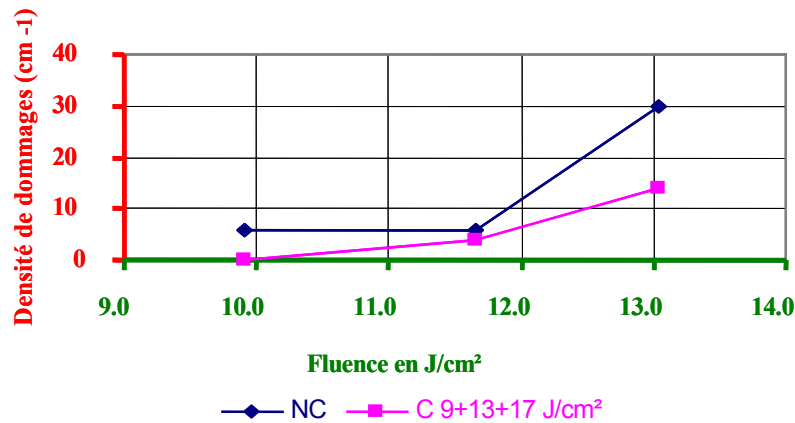
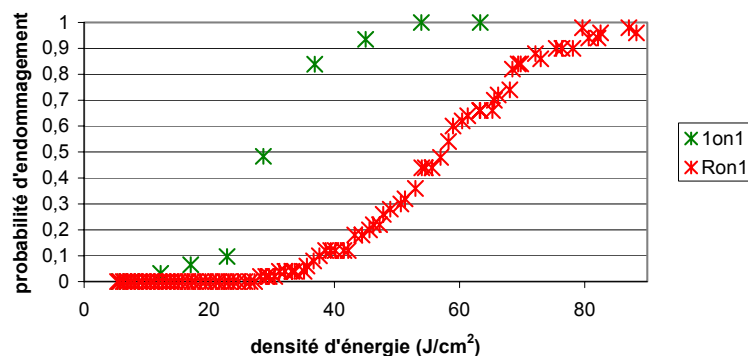


Fig.54 : Résultats obtenus sur la silice Suprasil après conditionnement laser à 355nm, 5ns, en mode raster scan avec trois passages à densité d'énergie croissante 9, 13 et 17 J/cm².

- **Premiers résultats obtenus sur le KDP.**

Tout d'abord, il est important de remarquer que lors d'une irradiation en faisceau parallèle du cristal, les endommagements apparaissent en priorité dans le **volume**. Lors des tests de tenue au flux, en faisceau parallèle, les endommagements peuvent donc se produire n'importe où dans le volume de l'échantillon. Dans ces conditions il est impossible d'utiliser une méthode de détection basée sur la visualisation des endommagements par microscopie optique. Comme nous l'avons déjà décrit, la mise en place d'une méthode prenant en compte la diffusion de la lumière par les endommagements a permis de résoudre ce problème.

Nous avons tout d'abord tracé les courbes de tenue au flux en volume du KDP (spot de 22 µm à 1/e²) afin de comparer les résultats obtenus en mode 1-on-1 et en mode R-on-1.

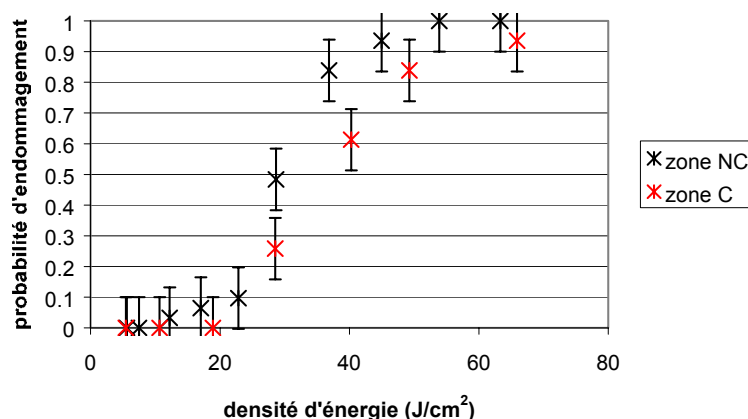


**Fig. 55 : Comparaison de la tenue au flue sur KDP en mode 1-on-1 et R-on-1**

Ces courbes (fig.55) montrent, que lors d'une irradiation répétée et progressive de l'échantillon de KDP, la tenue au flux du composant augmente de façon significative. Ce premier résultat intéressant va dans le sens d'une amélioration de la tenue au flux lors d'un pré-traitement sous seuil d'endommagement du KDP. Nous devons néanmoins confirmer cette tendance en réalisant une procédure de raster-scan sur cet échantillon.

Comme dans le cas précédent, nous choisissons la procédure de conditionnement une densité d'énergie maximale d'irradiation permettant d'éviter l'endommagement de l'échantillon lors de cette étape (ici 15 J/cm²).

La zone ainsi conditionnée a ensuite été testée en mode 1-on-1 afin de comparer sa tenue au flux volumique avec celle d'une zone n'ayant reçu aucune irradiation préalable (fig. 56).



**Fig.56 :Effet du conditionnement laser 355nm sur un cristal de KDP**

Ces résultats montrent clairement une amélioration de la tenue au flux du KDP lorsque ce dernier est soumis à une pré-irradiation sous seuil d'endommagement. En effet, compte tenu des barres d'erreur relatives aux mesures, on remarque une diminution significative de la

probabilité d'endommagement de la zone conditionnée. Par contre, il est impossible de dire si le seuil bas d'endommagement est modifié par cette pré-irradiation.

Les résultats obtenus sur le conditionnement de la silice Suprasil à l'Institut Fresnel, ainsi que dans les autres laboratoires impliqués dans l'étude, ne révèlent à ce jour que de faibles effets. De plus ces améliorations sont quelquefois peu reproductibles.

En ce qui concerne les résultats obtenus sur le KDP par contre, un effet de conditionnement très sensible est observé.

Au regard de ces résultats préliminaires, notre étude va s'orienter d'avantage sur le comportement du KDP sous irradiation en mode S-on -1 comme présenté au chapitre I.7.1.

D'autre part une étude sur le « conditionnement » des défauts artificiels dans la silice nous semble également une voie de compréhension des mécanismes pour reculer le processus d'initiation.

## Conclusion

Comme on a pu le constater tout au long du document, la compréhension des mécanismes d'endommagement laser est complexe. Cette complexité est liée à son aspect largement pluridisciplinaire. On peut citer la physique des lasers, la physique des matériaux, l'interaction laser matière, la physique des plasmas, la thermique, sans oublier les domaines directement liés à l'optique...Il s'agit donc d'une thématique difficile mais très complète et riche pour le chercheur.

Depuis la création de l'activité et donc de mes travaux, plusieurs voies de recherche ont été ouvertes afin de contribuer à la compréhension de l'initiation et de la propagation de l'endommagement laser dans les substrats et couches minces pour l'optique. Ces actions, souvent entreprises de manière simultanée ont été réalisées dans un esprit d'ouverture et de transversalité thématique.

Durant cette période de recherche, j'ai pu encadrer deux thèses soutenues, une en phase de l'être, quatre étudiants de DEA et cinq stagiaires étrangers de troisième cycle. D'autre part j'ai eu en charge la gestion de nombreux contrats de recherche et collaborations scientifiques. J'ai également pu m'investir dans la création de la plate-forme Photonique de Puissance à l'Institut Fresnel.

Mon détachement de 9 mois au 'Lawrence Livermore National Laboratory, m'a non seulement apporté des connaissances dans une thématique nouvelle au laboratoire mais également un autre regard sur la façon de mener ma recherche.

Sur un plan personnel le lecteur aura remarqué au fil du document, l'intérêt de l'auteur pour la physique expérimentale. Trouver le moyen de mettre en évidence un phénomène physique par la création d'outils expérimentaux originaux constitue un véritable moteur dans mon univers quotidien de chercheur.

Enfin par mes investissements très variés en enseignement à l'ENSPM, qui ne sont pas en relation avec mes activités de recherche, je pense avoir également étendu ma culture scientifique. Cette culture transverse constitue à mon sens un potentiel supplémentaire dans mes actions pédagogique et de recherche.

## II. Projets en cours et perspectives

Un certain nombre d'actions citées dans les différents chapitres précédents sont en cours de réalisation ou en phase de projet. Nous ne citerons ici que quelques-unes de celles-ci portant sur le cours terme.

### II.1. Poursuite des travaux en cours :

- **Détermination de la taille et de l'indice complexe des centres précurseurs**

Une **étude optique originale** pour la détermination de la **taille et de l'indice complexe des centres précurseurs** est en cours de finalisation au sein de l'équipe MAP2 par C.Amra et L.Gallais. Ces résultats non publiés à cette date ne seront pas présentés ici.

- **Développement du microscope photothermique couplé à l'endommagement à 355nm et mis en place d'une cartographie 3D.**

Comme il a été détaillé précédemment, nous avons pu mettre en évidence de manière certaine l'existence de centre précurseur de l'endommagement laser. Cependant le tracé de courbes de probabilité d'endommagement laser nécessaire à cette mise en évidence, ainsi que l'observation des morphologies d'impacts, nécessitent la destruction d'une partie de l'échantillon.

Le projet a pour objectif le développement d'une **méthode de détection non destructive et son couplage précis au dispositif d'endommagement à 355nm** afin de comprendre le rôle de ces défauts dans le processus d'endommagement, son initiation et sa croissance. Ce projet doit être réalisé sur le dispositif déjà existant à 1064nm, qui a notamment permis de détecter des nano-défauts absorbants et d'étudier leur comportement sous irradiation. **La résolution limite actuelle du microscope sur des inclusions d'or est de 100nm.** La phase de **pré-endommagement** est détectable également sur ces tailles.

Il est essentiel aujourd'hui **d'améliorer la résolution spatiale et la détectivité**, et surtout **de mener ces études dans l'UV (355nm)**. En effet **l'interaction des meilleures silices avec les rayonnements UV constitue un verrou technologique** particulièrement

important. Le projet proposé ici concerne précisément l'étude à **355nm des nano-centres précurseurs de l'endommagement dans la silice**.

Pour cela, il est nécessaire de mettre en place un dispositif constitué d'un microscope photothermique équipé d'un laser pompe (continu) à cette longueur d'onde ainsi que d'un laser d'endommagement YAG triplé.

D'autre part des platines de **translation de type piézoélectriques** sont indispensables pour permettre un **positionnement ultra précis du laser** d'endommagement sur les nano-défauts et permettre **une localisation 3D des défauts**. Cet aspect 3D de la cartographie apparaît essentiel étant donné les profondeurs de champs mises en jeu (inférieures au micron). L'étude initiale portera sur la détection de défauts artificiels de différentes tailles de quelques nanomètres, jamais obtenu à ce jour. Le but ultime étant la détection des défauts intrinsèques de la silice.

- **Etude de l'endommagement en tirs répétés**

Les premiers résultats obtenus à 1064nm et 355nm dans le volume de la silice ont montré une fatigue du matériau. La fréquence de tir semble jouer un rôle important dans les mécanismes en tirs répétés. Une étude du comportement en fonction de la fréquence est donc en cours de réalisation. A 355nm les valeurs de seuils sont déjà affectées entre 1 et 10 Hz. Un **temps de relaxation des centres précurseurs** (centre coloré possible pour cette longueur d'onde) pourra donc être déterminé en réalisant une étude en fréquence. Pour 1064nm par contre l'on ne voit pas d'effet de fréquence de 1 à 10hz. Une étude pour des fréquences plus basses est donc envisagée, on s'attend plutôt ici à des modifications potentielles liées au temps de relaxation des contraintes mécaniques induites sous flux.

D'autre part l'étude en tir répété doit également être réalisée sur des surfaces de silice, en effet le processus de conditionnement laser concerne en premier lieu la zone la plus fragile du matériau.

Enfin il serait intéressant comme cela a été dit dans la partie conditionnement, de comparer les résultats obtenus en mode S-on-1 dans le volume du KDP et de la silice, sachant que le KDP se conditionne sous pré-irradiation. Ceci dans le but de tenter de comprendre le processus d'amélioration de la tenue au flux.

- **Poursuite des travaux sur échantillons contenant des défauts artificiels :**

Comme nous l'avons vu, le projet sur les échantillons artificiels en collaboration avec le CEA est toujours d'actualité. De nouvelles expériences au laboratoire d'Argonne par spectrométrie à temps de vol sont programmées en septembre 2003. Les échantillons réalisées par le laboratoire LASIM, avec des particules d'or de 4nm, ont cette fois des densités de défauts beaucoup plus faibles, afin d'éviter les effets collectifs.

Des essais de **détection non destructifs sur ces particules de 4nm** sont envisagés dans notre collaboration. L'adaptation du code DELPOR aux petites particules est également en cours de réalisation.

**Des études physico-chimiques sont également réalisées sur les billes irradiées** pour différentes énergies (cf. II.2)

Enfin des études similaires seront réalisées sur des **billes d'alumines de taille 3nm**, afin d'effectuer des comparaisons entre le cas métallique et le cas diélectrique.

Un autre projet consiste cette fois à utiliser le **matériau sol-gel** comme matériau hôte des nano-particules. En effet il sera ainsi possible par cette voie, d'obtenir des défauts contrôlés de diamètre (1 à-100nm) distribués de manière **homogène dans le volume du matériau déposé**, et non plus sur une interface.

## **II.2. Ouverture vers des diagnostics non optiques :**

- **Diagnostics destructifs**

Des techniques de caractérisation tel que **la microscopie à balayage avec découpe ionique in situ (SEM, FIB, TEM) ainsi que l'analyse couplée d'analyse chimique localisée (EDS)** vont permettre d'aller plus loin dans la compréhension des modifications induites sous flux dans ces matériaux. Ces actions, sont engagées avec le centre de microscopie de Saint Jérôme-Marseille.

Les premières expériences consistent à observer des billes d'or des 100nm avant et après irradiations pour différentes énergies sous seuil (phases de pré-endommagement). On espère ainsi observer les modifications locales quelles soit de nature chimique ou structurale.



D'autre part des expériences menées en collaboration avec le laboratoire des verres de Montpellier sur des mesures de **micro-diffusion Brillouin et Raman** sont également programmées, afin de mettre en évidence des modifications de structure (densification, cristallisation...) dans la silice irradiée sous flux. Des résultats préliminaires montre des changements de phases autour de l'impact à 355nm.

- **Spectrométrie de plasma in situ**

Une étude spectroscopique, en temps réel, du plasma induit sous flux va être réalisée. Cette étude aura pour but premier de tenter de détecter des éléments, autres que le matériau intrinsèque, pouvant être des éléments précurseurs de l'endommagement. D'autre part une évolution potentielle de l'émission du plasma en fonction de l'énergie d'irradiation pourra nous renseigner sur la transformation du matériau sous flux.... D'autres aspects liés au plasma seront étudiés tels que la durée, la taille et la température. Le plasma a en effet lui-même une action dans le processus d'endommagement plus ou moins importante suivant les conditions de tir.

- **Cathodoluminescence couplée à la photothermie**

Dans le cadre d'un contrat d'étude entre le CEA le Ripault et l'Institut Fresnel, il est envisagé de réaliser une étude de la phase de pré-endommagement par cathodoluminescence, et de réaliser des comparaisons avec les résultats obtenus par cartographie en photothermie.

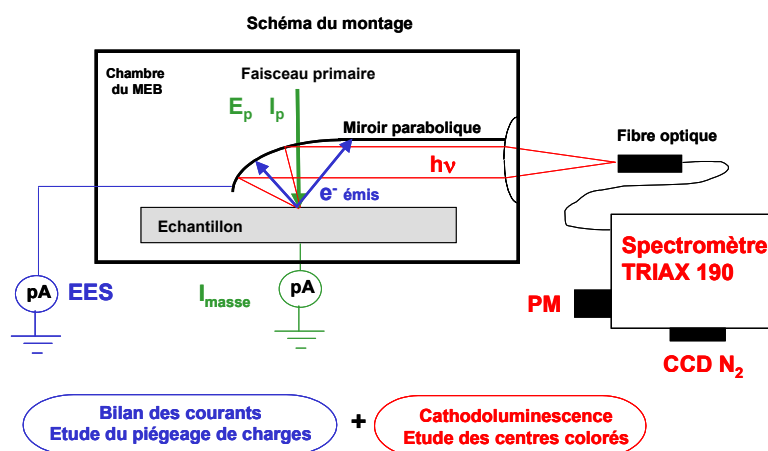
L'objectif général est d'étudier la corrélation entre centres colorés, absorption et tenue au flux, en particulier :

- le lien entre la densité de centres colorés, l'absorption de la couche et la tenue au flux
- l'influence des défauts générés par le faisceau d'électrons sur la tenue au flux.

L'institut Fresnel dispose d'un microscope photothermique qui permet de réaliser des mesures d'absorption à l'échelle du micromètre (diamètre du pompe est de 3µm) à la longueur d'onde de 351 nm et d'un banc de tenue au flux à la même longueur d'onde.

Le CEA Le Ripault effectue des mesures de cathodoluminescence à la même échelle de manière à mesurer la concentration en centres colorés dans une épaisseur d'environ 10 microns. De plus, le faisceau génère lui-même des centres colorés. C'est donc un moyen de créer des défauts de manière contrôlée. Pour l'instant, il est nécessaire de métalliser la surface

de l'échantillon avec de l'or, pour éviter les effets de charges. Cette couche d'or de quelques nanomètres peut être retirée très facilement mais il faut dans un premier temps montrer qu'aucune trace d'or ne subsiste et que cette phase de métallisation ne change pas les propriétés de tenue au flux. Ensuite, on pourra envisager des irradiations aux électrons à différentes énergies et différentes doses de manière à regarder l'influence des défauts créés sur la tenue au flux. Il est également possible de cartographier des zones différentes sur le même échantillon ou bien de réaliser la cathodoluminescence sous faible pression, auquel cas il n'est plus nécessaire de métalliser.



**FigX. Dispositif expérimental développée au CEA Le Ripault pour analyser le piégeage de charges par des défauts et la luminescence de centre coloré.**

### II.3. Plate-forme « Photonique de puissance »

La thématique de l'endommagement laser est à l'origine de la **Création d'une plate-forme intitulée « Photonique de puissance »** qui a été labellisée par POP SUD et a obtenu le soutien financé du ministère et du CNRS, de la région et du département. Ce projet d'un budget total de 900kEuros, prendra naissance à la rentrée 2004.

La plate-forme a pour but le développement d'un ensemble cohérent de moyens permettant de façon générale le diagnostic des optiques à haute tenue au flux. Cet ensemble de moyens devra répondre à deux missions. La première est de répondre aux besoins et applications industrielles, de contribuer à l'amélioration des technologies et au développement de nouveaux composants. La seconde est de faire avancer la compréhension des phénomènes

d'interaction laser matière et de permettre l'étude des mécanismes à l'origine des dégradations, réversibles ou irréversibles, associées au vieillissement ou à l'endommagement.

Les domaines industriels visés sont ceux de l'optique, notamment les grands programmes nationaux (Laser Mégajoule et procédé SILVA) et plus généralement le domaine des lasers de puissance et de leurs applications industrielles et bio-médicales qui se diversifient considérablement. Le domaine de la microélectronique avec le développement de la photolithographie dans l'ultra violet profond est concerné en premier titre, ainsi que celui des télécommunications avec l'émergence des micro-composants de puissance (diodes laser, OPO...). A terme la plate-forme aura pour vocation de devenir un pôle d'expertise nationale ainsi qu'une référence internationale dans le domaine de la compréhension de la tenue au flux des composants optiques sur toute la gamme spectrale (UV à IR) aussi bien dans les domaines continu qu'impulsionnel.

Les partenaires de la plate-forme sont le LP3 FRE 2165 CNRS, le GPEC via la plate-forme PIALA (Faculté des Sciences de Luminy) et les sociétés SESO et CILAS.

La plate-forme sera placée sous la responsabilité de l'Institut Fresnel et s'appuiera sur les moyens humains et le matériel existants dans les deux laboratoires d'accueil : l'Institut Fresnel (équipe MAP2) et le laboratoire Lasers Plasmas et Procédés Photoniques (LP3). Les équipements seront installés dans les locaux de l'Institut Fresnel et ceux du laboratoire LP3.

Trois domaines thématiques sont prioritaires pour ce projet :

- La métrologie de l'endommagement laser avec la mesure des courbes de seuil de tenue au flux pour différentes longueurs d'onde (VUV à IR)
- Le vieillissement des optiques UV et IR
- Le conditionnement par laser (recuit, nettoyage, préparation) des composants optiques dans le but d'augmenter leur durée de vie et leur tenue au flux.

Pour le développement de ces thématiques, trois opérations devront être mises en œuvre :

- L'extension du banc de mesure des seuils d'endommagement aux longueurs d'onde de l'UV à l'IR,
- La conception et la réalisation d'un banc d'endommagement et conditionnement et/ou vieillissement UV (193 nm),
- La réalisation d'un banc d'interaction à l'échelle de la femtoseconde.

- <sup>1</sup> L. Sheehan, M. Kozlowski and F. Rainer "Diagnostics for the detection and evaluation of laser induced damage, Proc. SPIE **2428**, 13–22 (1995)
- <sup>2</sup> L.D. Merkle, N. Koumvakalis, M. Bass, "Laser-induced bulk damage in *SiO2* at 1.064, 0.532, and 0.355  $\mu\text{m}$ ," Journal of Applied Physics **55**, 772–775 (1984)
- <sup>3</sup> K.H. Guenther, T.W. Humpherys, J. Balmer, J.R. Bettis, E. Casparis, J. Ebert, M. Eichner, A.H. Guenther, E. Kiesel, R. Kuehnel, D. Milam, W. Rysek, S.C. Seitel, A.F. Stewart, H. Weber, H.P. Weber, G.R. Wirtenson and R.W. Wood, "1.06  $\mu\text{m}$  laser damage of thin film optical coatings : a round robin experiment involving various pulse lengths and beam diameters," Applied Optics **23**, 3743-3752 (1984)
- <sup>4</sup> J.Hue, J. Dijon, P. Garrec, L. Poupinet, P. Lyan "Beam characterization : application to the laser damage threshold," Proc. SPIE **3578**, 633–644 (1999)
- <sup>5</sup> B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, B.W. Shore and M.D. Perry, "Optical ablation by high-power short-pulse lasers," Journal of the Optical Society of America B **13**, 459–468 (1997)
- <sup>6</sup> S.R. Foltyn, "Spotsize effects in laser damage testing," in *Damage in laser materials : 1982* , 368–379 (1983)
- <sup>7</sup> M. Bass and H.H. Barrett, "Laser-induced damage probability at 1.06  $\mu\text{m}$  and 0.69  $\mu\text{m}$ ," Applied Optics **12**, 690–699 (1973)
- <sup>8</sup> J.W. Arenberg, M.E. Frink, D.W. Mordaunt, G. Lee, S.C. Seitel, A. Teppo, "Correlating laser damage tests," Applied Optics **28**, 123–123 (1989)
- <sup>9</sup> L. Gallais, J.Y. Natoli « Optimized metrology for laser damage measurement - Application to multiparameter study », Applied Optics **42**, N°6 (2003)
- <sup>10</sup> J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, M. Commandre, C. Amra "Toward an absolute measurement of LIDT ", SPIE **4932**, 238-249 (2003)
- <sup>11</sup> J-Y. Natoli, L. Gallais, H.Akhouary, C.Amra « *Laser induced damage of materials in bulk, thin film and liquid forms.* » Applied Optics **41**, p.3156-3166 (2002)
- <sup>12</sup> J.B. Franck, S.C. Seitel, V.A. Hodgkin, W.N. Faith and J.O. Porteus "Automated pulsed testing using a scatter-probe damage monitor," in *Damage in laser materials : 1984*, Spec. Publ. 727, 71–76(1986)
- <sup>13</sup> R. Sharp III and Mike Runkel "Automated damage onset analysis techniques applied to KDP damage and the Zeus small area damage test facility," Proc.SPIE **3902**, 361–368 (2000)
- <sup>14</sup> S. Petzold, A. Elg, M. Reichling, J. Reif, E. Matthias, "Surface laser damage thresholds determined by photoacoustic deflection," Applied Physics Letters **53**, 2005-2007 (1988)
- <sup>15</sup> L. Martin, A.M Norton, G. Thomas, "Ultrasonic monitoring of laser damage in fused silica," Applied Physics Letters **78**, 3403–3405 (2001)
- <sup>16</sup> A.A. Said, T. Xia, A. Dogariu, M.J. Soileau, E.W. Van Stryland and M. Mohebi, "measurement of the optical damage threshold in fused quartz," Applied Optics **34**, 3374-3376 (1995)
- <sup>17</sup> K. Mann and H. Gerhardt "automated damage testing facility for excimer laser optics," in *Laser-Induced damage in Optical Materials: 1989*, Spec. Publ. **1438**, 39–46 (1989)
- <sup>18</sup> ISO 11254-1, "Determination of laser-damage threshold of optical surfaces-Part 1 : 1:1 test" 2000, ISO 11254-2, "Determination of laser-damage threshold of optical surfaces-Part 2 : S:1 test" 2001
- <sup>19</sup> L.Gallais, J.Y. Natoli , H. Akhouayri and C.Amra "CW and nano-second laser irradiation on materials : A comparison of thermal effects ", Proc. SPIE **4347**, (2001).
- <sup>20</sup> J.Y. Natoli and P. Volto and M. Pommies and G. Albrand and C. Amra, "Localized laser damage test facility at LOSCM : real time optical observation and quantitative AFM study", Proc. SPIE, **3244** (1998).
- <sup>21</sup> S. Papernov and A.W. Schmid. "Heat transfer from localized absorbing defects to the host coating material in *hfo2/sio2*", Proc. SPIE **2966**, 315-325, 1997.
- <sup>22</sup> J. Dijon, T. Poiroux, and C. Desrumaux. "Nano absorbing centers : a keypoint in laser damage of thin films", Proc. SPIE **2966**, 315-325, 1997

- <sup>23</sup> S.R. Foltyn. "Spot size effects in laser damage testing". In *Damage in laser materials* : 1982, Nat. Bur. Stand. (U.S.) Spec. Publ., pages 368-379, 1983.
- <sup>24</sup> J.O. Porteus and S.C. Seitel. "Absolute onset of optical surface using distributed defect ensembles". *Applied Optics*, **23** :3796-3805, 1984.
- <sup>25</sup> R.M. O'Connell. "Onset threshold analysis of defect-driven surface and bulk laser damage". *Applied optics*, **31** :4143-4153, 1992. 27
- <sup>26</sup> B. Bertussi, J.Y. Natoli, M. Commandre, C. Amra, "Determination of surface contamination layer thickness in silica thanks to laser damage investigation" in *Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA)* Septembre 2003
- <sup>27</sup> L. Gallais, « Endommagement laser dans les composants optiques : metrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs. Thèse de doctorat en Science, Université Aix Marseille III, 12 novembre 2002.
- <sup>28</sup> M. Commandré, P. Roche, "Characterisation of optical coating by photothermal deflection," *Appl. Opt.* **35**,5021 (1996)
- <sup>29</sup> A.Gatto, M.Commandre, "Multiscale mapping technique for the simultaneous estimation of absorption and partial scattering in optical coatings" *Applied Optics* **41**, 225-234, 2002.
- <sup>30</sup> Z. L. Wu, L. Sheehan, and M. R. Kozlowski, *Optic Express* Vol. 3, No. 10 / 376- (1998)
- <sup>31</sup> W. B. Jackson, N. M. Amer, A. C. Boccara, D. Fournier, "Photothermal deflection spectroscopy and detection," *Appl. Opt.* **20**, 1333-44 (1981).
- <sup>32</sup> J.Y. Natoli, C. Deumié and C. Amra "Laser-Modulated Scattering from optical surfaces using fiber detection", *Proc. SPIE* 3902, 128-137, (2000).
- <sup>33</sup> Craig F. Bohren and Donald R. Huffman, *Absorption and scattering of light by small particle* (John Wiley & Sons, New York, (1983).
- <sup>34</sup> N. Bloembergen. "Roles of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics". *Applied Optics*, **12** :661-664, 1973.
- <sup>35</sup> Z.L. Wu, M.D. Feit, M. Kozlowski, J.Y. Natoli, A. Rubenchik, L. Sheehan, M. Yan "Single-beam photothermal microscopy: a new diagnostic tool for optical materials", *Proc.SPIE* **3578**, 226-234,(1999).
- <sup>36</sup> S. Maure, G. Albrand, M. Bayle, B. Lazarides, and C. Amra, "Low-level scattering and localized defects in optical multilayer", Conf presented at 'optical Interference Coating' topical meeting, 1995, Tucson, Arizona.
- <sup>37</sup> A. During, « Microscope photothermique et endommagement laser » Thèse de doctorat en Science, Université Aix Marseille III, décembre 2002.
- <sup>38</sup> A. During, C. Fossati, M. Commandré, "Developpement of a photothermal microscope for multiscale studies of defects ," *Proc. SPIE* **4679**, 400 (2002)
- <sup>39</sup> S. Papernov, A. W. Schmid, R. Krishnan and L. Tsybeskov, "Using colloidal gold nanoparticles for studies of laser interaction with defects in tin films", *SPIE* **4347**, 146-154 (2001)
- <sup>40</sup> S. Papernov and A. W. Schmid, "Correlation between embedded single gold nanoparticles in SiO<sub>2</sub> tin film and nanoscale crater formation induced by pulsed laser radiation" *J. Appl. Phys.* **92**, 5720 (2002).
- <sup>41</sup> J.Y Natoli, L. Gallais et M. Perra : Rapport de contrat Institut Fresnel - CEA Bruyère le Châtel « Etude d'échantillons test en vue d'appréhender l'initiation de l'endommagement de la silice sous irradiation laser impulsionnelle » contrat n° 4600014995.
- <sup>42</sup> F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vienne, H. Ward, M. Pellin, M. Savina M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuillon, M. Pellarin L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, J. T. Donohue, "Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica" *Applied physique B* ,**75**,n°8, p803-815, (2002).
- <sup>43</sup> F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, M. Commandré, A. During, J. Y. Natoli, M. J. Pellin, M. R. Savina, E. Cottancin, M. Pellarin, "Observation by photothermal microscopy of increased silica absorption in laser damage induced by gold nanoparticles" soumis à **Applied Physics letters** (2003)
- <sup>44</sup> H. Bercegol, F. Bonneau, P. Bouchut, P. Combis, J. Donohue, L. Gallais, L. Lamaignère, C. Le Diraison, M. Loiseau, J. Y. Natoli, C. Pellé, M. Perra, J. L. Rullier, J. Vienne, H. Ward, "Laser ablation

---

of fused silica induced by gold nano-particles: Comparison of simulations and experiments at  $\lambda = 351$  nm”, Proc. SPIE **4760** 21-26 April 2002.

<sup>45</sup> F. Bonneau, P. Combis, J.B. Gaudry, G. Daval, *SPIE*, vol. **4347**, p. 560 (2001).

<sup>46</sup> F. Bonneau, P. Combis, J. Vienne, G. Daval, *SPIE*, vol. **4347**, p. 308 (2000).

<sup>47</sup> B. Bertussi, J.Y. Natoli, A. Durning, M. Commandré, L. Gallais, J.L. Rullier, H. Bercegol, P. Bouchut, « Correlation between laser-induced-damage and nano-sized absorbing defects », Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003

<sup>48</sup> A.E. Chmel. “fatigue laser-induced damage in transparent materials”. Materials Science and Engineering B, **49** :175-190, 1997.

<sup>49</sup> L. Gallais, J.Y. Natoli and C. Amra “Statistical study of single and multiple pulse laser-induced damage in glasses” Optic Express **10** n°25 1466-1474 (2002)

<sup>50</sup> - J. Y. Natoli, B. Bertussi, L. Gallais, M. Commandré, C. Amra, « Multiple pulses laser irradiation study in silica : Comparison between 1064nm and 355nm”.Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003

<sup>51</sup> C.R Wolf, M.R Kozlowski, M. Staggs« Permanent laser conditioning of thin film optical materials United States Patent N° 5 472 748 (1995)

<sup>52</sup> M. Runkel, J. De Yoreo, W. Sell, D. Millam« Laser conditioning of KDP on the Optical sciences laser using large area beams. » *SPIE* **3244**, 51-63 (1998)

<sup>53</sup> M. Staggs, M. Yan, M. Runkel« Laser Raster Conditioning of KDP and DKDP Crystals using XeCl and Nd:YAG laser », *SPIE* **4347**, p.400-407 (2001).

<sup>54</sup> Rapport de Contrat N° 4600027740 entre le CEA/CESTA/DLP/SCPL/LEL-Bordeaux et L’Institut Fresnel -Marseille (mai 2003).

<sup>55</sup> Journées du groupe de travail sur l’endommagement laser GETEL du 2-3 juin 2003 au CEA Bruyères Le Châtel-Paris.

<sup>56</sup> J.E. Peterson, S.M. Maricle, R.M. Brusasco, B.M Penetrante “Reduction of damage initiation density in fused silica optics via UV laser conditioning” United States Patent N° 0046579 (avril 2002)

# Partie B : Résumé des actions pédagogique et de recherche

## I. Activités d'enseignement à l'ENSPM

Etablissement : Ecole Nationale Supérieure de Physique de Marseille (ENSPM)

Volume horaire : Cours Magistraux (CM) 62h – Travaux Dirigés (TD) 48h – Travaux Pratiques (TP) 120h

- **Enseignement 2<sup>ème</sup> année:**

- **Systèmes Numériques (CM, TD, TP) :** l'enseignement porte sur les bases de l'électronique numérique, des portes élémentaires jusqu'aux circuits logiques programmables (ALU, PAL, FPGA...). L'étudiant doit être capable de réaliser la synthèse de systèmes logiques combinatoires et séquentiels.
- **Composants pour le numérique (CM) :** Ce cours explique le fonctionnement d'une porte élémentaire pour différentes technologies (TTL, ECL, CMOS, BICMOS). L'architecture à base de transistors est détaillée pour mettre en avant les paramètres liés à la commutation. Le choix et l'interfaçage des technologies sont traités
- **Physique des capteurs (CM) :** Ce cours créé depuis trois ans, a évolué aujourd'hui vers une version scindée en deux volets.

Le premier volet est une présentation des principes physiques le plus souvent rencontrés dans les capteurs. Une approche des capteurs du point de vue des matériaux est ensuite présentée. Les caractéristiques métrologiques des capteurs sont énoncées (grandeurs d'influence, erreur sur la mesure, étalonnage du capteur, limites d'utilisation, sensibilité, rapidité, temps de réponse...). Enfin l'évolution des capteurs est abordée : les microcapteurs – capteurs intégrés – notion de bus de terrain, profibus, fieldbus...

Le deuxième volet de cet enseignement consiste en une série d'exposés réalisés par les étudiants sur des capteurs de leur choix. Ils doivent utiliser leur pré-requis du cours pour élaborer leurs exposés. Une discussion sur leur exposé est alors ouverte. Ce type d'enseignement interactif est très apprécié des étudiants et de l'enseignant.

- **Enseignement 3<sup>ème</sup> année (CM) : Axes d'approfondissement**

- Microélectronique : **Caractérisation physique des matériaux** : Microscopie électronique, diffraction X et électronique. Technique d'analyse chimique : ESCA, Auger, SIMS, RBS.
- Optique : **Imageries non conventionnelles** : Microscopie à champ proche et Microscopies à sources électronique et ionique.

- **Actions ponctuelles de formation continue en physique des capteurs, imageries non conventionnelles, endommagement laser.**

- Dans le cadre d'une réforme pédagogique de notre établissement en 2000, les enseignements de deuxième année ont dû être profondément rénovés, et ceux de troisième année totalement créés.

Ces enseignements vont de nouveau être modifiés dans le cadre de la création de l'EGIM l'Ecole Généraliste d'Ingénieur de Marseille en 2003-2004.

Mon expérience d'enseignant depuis mon recrutement à l'ENSPM a donc été dénuée de monotonie.



## II. Activités d'encadrement

### □ ENCADREMENT DE THESES

**Codirection de trois thèses** : deux soutenues (Directeur ; **C. Amra**) et d'une thèse en cours (octobre 2002- octobre 2005) (Directrice : **M. Commandre**) .

**1. Mlle Patricia Volto** : Thèse CIFRE LOSCM-REOSC (1995-1998) sur le sujet : « Etude de l'endommagement laser dans les couches minces optiques ». Soutenue le 14 décembre 1998. Jury : MM C. Amra, F. Genin, J.Y. Natoli, G.Otrio, A. Roussel, B. Pinot, M. Sentis.

**2. M. Laurent Gallais** : Thèse DGA (1999-2002) sur le sujet : « Endommagement laser dans les composants optiques : Métrologie, Analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs ». Soutenance le 12 novembre 2002 à 11h00, Jury : C. Amra, H. Bercegol, J. Boulmer, P. Chavel, J.P. Huignard, J.Y. Natoli.

**3. M. Bertrand Bertussi** : Thèse DGA (2002-2005) : sujet : «Tenue au flux et conditionnement laser dans les composants optiques»

### □ ENCADREMENT DE DEA

**Responsable de quatre stages de DEA** portant sur la thématique de l'endommagement :

**1. M. Matthieu Pommies** (1997) : « Rôle des effets thermiques dans l'endommagement laser de couches minces optiques à 1.06 micromètres »

**2. M. Yves Mevel** (1998) : « Etude quantitative de la morphologie des endommagements laser dans la silice à 1064nm».

**3. M. Dany Devos** (2001) : « Optimisation de la métrologie pour l'étude de l'endommagement laser »

**4. M. Bertrand Bertussi** (2002): « Étude des précurseurs de l'endommagement laser: Conditionnement de la silice à 355nm en régime nanoseconde ».

### □ ENCADREMENT DE STAGIAIRES ETRANGERS (FIN D'ETUDE UNIVERSITAIRE) ET DUT:

**1. Mlle Maria Lassithiotaki's** (Université d'Eraklion-Crête) (janvier- mai 2000) : « Révélation de défauts de taille nano-métrique dans des liquides calibrés par le tracé de courbes de probabilité d'endommagement ».

**2. Mlle Michella Perra** (Université de Milan-Italie) (mai 2001-Juin 2002) : « Etude de l'interaction laser à  $1\omega$  et  $3\omega$  avec des particules d'or enterrées dans des couches de silice »

**3. M. Gabrielle Casalnuovo** (Université de Milan-Italie) (novembre 2002-mai 2003). « Etude de l'endommagement laser dans les liquides de polissages et silice polie associée ».

**4. M. Dimitri Sofikitis** (Université d'Eraklion - Crête) (janvier-juin 2003). « Etude du pré-endommagement laser sur des nanobilles métallique par microscopie photothermique ».

**5. M. Benjamin Richards** (Université de CREOL Central Floride) (mai-septembre 2003): « Optimisation de la détection de nano-inclusion par microscope photothermique ».

**6. M. Cyril Escolano** (DUT Mesures Physiques Marseille) (2002) « Etude de l'endommagement dans des couches minces optiques par claquage électrostatique », stage réalisé à l'institut Fresnel Marseille.

En moyenne les enseignants de l'ENSPM doivent assurer chaque année le suivi de trois stagiaires élèves ingénieurs de début de troisième année et trois projets de fin d'étude.

### **III. Collaborations et Gestion de contrats**

**1-** Contrat d'étude CEA(DAM)–LOSCM sur la tenue au flux des miroirs  $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$  irradiés à  $1.06\mu\text{m}$  (1997) (*23kEuros* pour la partie endommagement).

**2-** Collaboration avec le Lawrence Livermore National Laboratory (USA-CA) sur le développement d'un outil non destructif pour révéler la présence de centres absorbants dans les couches et substrats optiques.

**3-** Contrat d'étude DGA-Institut Fresnel sur le développement d'un outil non destructif de détection des centres précurseur de l'endommagement laser (2001). (*32kEuros*)

**4-** Contrat d'étude CEA(CESTA)-Institut Fresnel sur la validation par méthode destructive de détection de sites précurseurs et développement de la métrologie de l'endommagement (2001). (*30kEuros*)

**5-** Collaboration avec la Pologne (Varsovie), Programmes POLONIUM 2000 et 2001, « Couches minces optiques et micro lasers » avec l'Institute of optoelectronics (MUT, Military University of technology). Le projet porte sur la conception, la réalisation et la caractérisation de composants optiques multicouches pour micro lasers pompés par diodes à la longueur d'onde de 808 nm et émettant à 1064 nm.. L'équipe MAP2 intervient dans la caractérisation des substrats avant et après dépôt en termes de diffusion, de rugosité, d'absorption et de tenue au flux laser.

**6-** Contrat d'étude CEA(CESTA)-Institut Fresnel sur l'étude du conditionnement laser dans la silice (2002). (*46kEuros*)

**7-** Contrat d'étude CEA(DAM)–Institut Fresnel sur l'étude de l'endommagement de billes d'or incluses dans la silice (2001-2002). (*8kEuros*)

**8-** Contrat d'étude CEA(DAM)– Institut Fresnel : Caractérisation destructive et non destructive de l'interaction de billes d'or incluses dans la silice à 1064 nm.(2002-2003). (*16kEuros*)

**9-** Contrat d'étude CRISTAL LASER –Institut Fresnel sur la tenue au flux de cristaux de KTP (2002) (*4kEuros*).

**10-** Contrat CEA(DAM)–Institut Fresnel : Etude de l'évolution de l'absorption après irradiation sous flux d'endommagement sur des billes d'or et d'aluminium inclus dans la silice (2002-2003) (*23kEuros*)

**11-** Collaboration avec L'entreprise SESO (Aix-Les Milles) sur l'étude de l'effet du polissage sur la tenue au flux des substrats de silice.

12- Collaboration avec le Laboratoire des Verres de Montpellier (contact Mme Marie Foret) sur l'évolution de la structure des verres sous pré-irradiations par la technique de diffusion Brillouin.

13- Collaboration avec le « Argonne National Laboratory –University of Chicago » sur l'étude de l'initiation de l'endommagement de billes d'or incluses dans la silice à 300 en régime nanoseconde. Le diagnostic réalisé est de la spectroscopie de masse par temps de vol sous flux.

14- CILAS : développement de composants de hautes tenues au flux pour le visible et l'infrarouge (bandes I, II et III)

15- Participation à la création d'une plate-forme « Photonique de puissance » (900kEuros) (détail §II.3). Cette plate-forme prend effet en juillet 2003.

16- Demande d'une ACI jeune chercheur pour 2003(105kEuros)

## IV. Liste des travaux scientifiques

### □ PUBLICATIONS AVEC COMITE DE LECTURE ET COMMUNICATIONS INTERNATIONALE AVEC ACTES

1- J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri and C. Amra, " Laser-induced damage of materials in bulk, thin film and liquid forms", **Applied Optics**, Vol. **41**, 3156-66, n°16 (2002).

2- L.Gallais and JY.Natoli, "Optimized metrology for laser measurement and associate multiparameters study" accepté pour publication le 16 octobre 2002 à **Applied Optics** Vol **42**, p 960, (2003).

3 - F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vienne, H. Ward, M. Pellin, M. Savina M. Broyer, E. Cottancin, J. Tuauillon, M. Pellarin L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, J. T. Donohue, "Study of UV laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica" **Applied physique B** ,vol. 75,n°8, p803-815, (2002).

4- L. Gallais, J. Y. Natoli, C. Amra, "Statistical study of single and multiple pulse laser-induce damage in glasses", **Optic Express**. Vol **10**,°25, p 1465-1474 (2002).

5- J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Betussi, A. During, M. Commandré, J. L. Rullier, F. Bonneau, "Localised pulsed laser interaction with sub-micronic gold particle embedded in silica : a way to investigate the laser damage initiation process", **Optics Epress.**, Vol **11**, n°7, p 824-827 (2003).

6- J.L. Rullier, F. Bonneau, L. Lamaignère, J.T. Donohue, J.Y. Natoli , L. Gallais, B. Betussi , "Comparison between simulation and experiments on UV and IR interaction with gold nanoparticles embeded in silica", en revision pour publication\_ à **Applied physics B** (2003).

7 -F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier ,M. Commandré ,A. During ,J. Y. Natoli ,M. J. Pellin , M. R. Savina, E. Cottancin , M. Pellarin, "Observation by photothermal microscopy of increased silica absorption in laser damage induced by gold nanoparticles" accepté pour publication le 2 septembre 2003 à **Applied Physic letters**.

8- J.Y. Natoli, P. Volto, M. Pommies, G.Albrand and C. Amra , "Localized laser damage test facility at LOSCM: Real time otical observation and quantitative AFM study.". in *Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA)*, Proc. SPIE **3244**, 76-85,(1998).

9- C. Amra, S. Maure,C. Deumié and J.Y. Natoli "Roughness-induced absorption, multidielctric resonances and scattering ellipsometry for laser damage investigation ". in

Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **3244**, 228-241,(1998).

**10-** M. Ranier, P. Volto ,J.Y. Natoli , and C. Amra « Waveguide losses by photothermal techniques in multilayer for laser damage investigation ». in Laser-Induced damage in Optical Material (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **3244**, 484-490,(1998).

**11-** Z.L. Wu, M.D. Feit, M. Kozlowski, J.Y. Natoli, A. Rubenchik, L. Sheehan and M. Yan “Single-beam photothermal microscopy – a new diagnostic tool for optical materials”, in Laser-Induced damage in Optical Material (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **3578**, 226-234, (1999).

**12.** J.Y. Natoli, C. Deumié and C. Amra “Laser-Modulated Scattering from optical surfaces using fiber detection”, in *Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA)*, Proc. SPIE 3902, 128-137, (2000).

**13.** J. Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri and C. Amra “Quantitative study of laser damage threshold curves in silica and calibrated liquids: Comparison with theoretical prediction”, in *Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA)*, Proc. SPIE **4347**, 295-305 (2001).

**14-** L.Gallais, J.Y. Natoli , H. Akhouayri and C.Amra “CW and nano-second laser irradiation on materials : A comparison of thermal effects ” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **4347**, (2001).

**15.** Amra C., Deumié C., Natoli J.Y., Commandré M., “Topographie multi-échelle pour le filtrage optique multicouche large-bande”, Proc. J. Phys. IV France, Vol.11, pp.Pr7-53 - Pr7-56, (2001).

**16-** J. Y. Natoli, L. Gallais, and C. Amra “Detection of nano-defects in different glasses for bulk and surfaces using laser damage investigations” Proceeding of 2002 Glass Odyssey 6<sup>th</sup> ESG Conference June 2-6, 2002 – Montpellier.

**17-** H. Bercegol, F. Bonneau, P. Bouchut, P. Combis, J. Donohue, L. Gallais, L. Lamaignère, C. Le Diraison, M. Loiseau, J. Y. Natoli, C. Pellé, M. Perra, J. L. Rullier, J. Vienne, H. Ward, “Laser ablation of fused silica induced by gold nano-particles: Comparison of simulations and experiments at  $\lambda = 351 \text{ nm}$ ” in *Conference High-Power Laser Ablation 2002 Taos-New Mexico (USA)* Proc. SPIE **4760** 21-26 April 2002.

**18-** J.Y. Natoli, L. Gallais, B. Bertussi, M. Commandre, C. Amra “Toward an absolute measurement of LIDT ” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA, 18-20 Sept 2002), Proc. SPIE **4932**, 224-238,2003

**19-** J-Y .Natoli, L. Gallais, M. Perra, F. Bonneau, P. Combis, J-L. Rullier, P. Bouchut , L. Lamaignère, “Experimental results of laser interaction with included gold particles in silica at  $1\omega$  and  $3\omega$ ” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **4932**, 2003.

**20-** L. Gallais, C. Amra, J-Y. Natoli, “Calculated and measured thermally laser damage in metallic thin films, as a function of pulse duration” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **4932**, 16-25, 2003

**21-** F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, M. Pellin, M. Savina , L. Gallais, J. Y. Natoli, M. Perra, H. Bercegol, L. Lamaignère, M. Loiseau, “Using a TOF mass spectrometer for studies of laser interaction with 3 nm diameter gold nanoparticles embedded in silica” in Laser-Induced damage in Optical Materials(Symposium Boulder-USA), Proc. SPIE **4932**, 2003

**22-** A. During, M. Commandré, C. Fossati, J-Y.Natoli , J-L. Rullier, H. Bercegol, P. Bouchut, “Photothermal microscopy for in-situ study of laser damage induced by gold inclusions” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA). Proc. SPIE **4932**, 374-384, 2003.

**23-** F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, J. Vienne, L. Gallais, J. Y. Natoli, H. Bercegol, L. Lamaignère, P. Bouchut “Comparison of numerical simulations with experiment on generation

of craters in silica by laser” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA) Proc. SPIE décembre 2002.

**24-** M.Commandre and J.Y.Natoli, **Conférence invitée** : “Photothermal microscopy and laser damage in optical components” (OSA meeting -San Diego (USA) 3-8 Août 2003)

Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003.

**25-** J. Y. Natoli, B. Bertussi, L. Gallais, M. Commandré, C. Amra, « Multiple pulses laser irradiation study in silica : Comparison between 1064nm and 355nm”.Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003.

**26-** Laurent Gallais, Claude Amra and Jean-Yves Natoli, « Method for the optical measurement of size and complex index of laser damage precursors in optical components” Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003

**27-** Mireille Commandré, Caroline Fossati, Jean Yves Natoli, Claude Amra, **Conférence invitée** "Photothermal analysis of sub-micrometric scale defects in laser damage studies".Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003.

**28-** Bertrand Bertussi, Jean-Yves Natoli, Annelise Durring, Mireille Commandré, Laurent Gallais, Jean-Luc Rullier, Hervé Bercegol, Philippe Bouchut, « Correlation between laser-induced-damage and nano-sized absorbing defects » Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003

**29-** F. Bonneau, P. Combis, J. L. Rullier, B. Bertussi, A. Durring, M. Commandré, J. Y. Natoli, E. Cottancin, M. Pellarin « Photothermal microscopy for in-situ study of laser interaction with 3 nm diameter gold nanoparticles embedded in silica **thin films**” Optical System Design 2003, Saint Etienne, 30 septembre 2003.

**30-** C.Amra, M.Commandre, J.Y.Natoli, C.Deumié, **Conférence Invitée** « Optical characterisation techniques for interference coatings » UNY-VAC Symposium on Functional Coatings and Surface Engineering – FCSE 2003. Montréal, June ‘-6, 2003.

**31-** B. Bertussi, J.Y. Natoli, M. Commandre, C. Amra, “Determination of surface contamination layer thickness in silica thanks to laser damage investigation” in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA) 22-24 Septembre 2003

**32-** A. Durring, B. Bertussi\*, M. Commandré\*, J.Y. Natoli\*, F. Bonneau, P. Combis, J.L. Rullier, E. Cottancin, M. Pellarin “Photothermal microscopy for the study of laser damage initiation by *in-situ* measurement of absorption modification of silica seeded with gold nanoparticles”, in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA) 22-24 Septembre 2003

**33-** L. Gallais, J.Y. Natoli, M. Commandré and Claude Amra "Size and complex index of nanocenters: optical measurements", in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA) 22-24 Septembre 2003

**34-** J. Y. Natoli, B. Bertussi, M. Commandré, J. L. Rullier\*, F. Bonneau\*, P. Combis\* “Photothermal microscopy for in-situ study of laser interaction with 100 nm diameter gold nanoparticles embedded in silica thin films”, in Laser-Induced damage in Optical Materials (Symposium Boulder-USA) 22-24 Septembre 2003

## **□ COMMUNICATIONS INTERNATIONALES ET NATIONALES SANS ACTES**

**35-** J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri and C. Amra, “ Laser-induced damage of materials in bulk, thin film and liquid forms" Présenté au Congrès international “Optical Interface and Coating" OIC 2001, Banff - Canada, 15-20 July, 2001.

**36-** L. Gallais, J.Y. Natoli and C. Amra “ Thermally induced laser damage in interferential light absorbers”, Présenté au Congrès international “Optical Interface and Coating" Optical Interference Coating 2001, Banff- Canada, 15-20 July, 2001.

- 37- JY .Natoli, C. Deumié, L. Gallais, C. Amra “Deflection of angular scattering resulting from laser irradiation” Présenté au Congrès international “Optical Interface and Coating” OIC 2001 Banff - Canada, 15- 20 July, 2001.
- 38- L. Gallais, M. Perra, J.Y. Natoli, C. Amra, “Etude des nanocentres précurseurs de l’endommagement laser dans la silice”: Colloque "OPTIX 2001" Marseille, 26-28 Nov., 2001
- 39- L. Gallais, J.Y. Natoli “Optimized metrology for accurate laser damage measurements” CLEO/QUELS X , Long Beach –USA mai 2002.
- 40- J.Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri and C. Amra “Détermination fine de probabilité d’endommagement laser par une etude localisée” Communication aux journées du groupe de travail sur l’endommagement laser au CEA CESTA, Projet Mégajoule, juin 2002.
- 41- L. Gallais, J.Y. Natoli “Optimisation de la métrologie pour les mesures de courbes de seuil d’endommagement laser”: Communication aux journées du groupe de travail sur l’endommagement laser au CEA CESTA, Projet Mégajoule, juin 2002.
- 42- During A. , Commandré M. , Fossati C. , Natoli J-Y. , “ Microscope photothermique in situ : application à la détection de nano inclusion d’or dans la silice ”, Communication aux journées du groupe de travail sur l’endommagement laser au CEA CESTA, Projet Mégajoule, juin 2002.
- 43- Amra C., Deumié C., Natoli J-Y, Commandré M. “ Topographie multi-échelle pour le filtrage optique multicouche large-bande ”, 5th Colloque sur les sources cohérentes et incohérentes VV, VUV, X, Ile de Porquerolles, Mai, 2000.
- 44- . Natoli J.Y. , Volto P. , Akhouayri H. , Amra C. , “Defect densities and threshold curves of damage” Conf. “ Optical Systems design and Production”, Technical University of Berlin, 25-28 May, 1999
- 45- M. Commandre and J.Y. Natoli “ photothermal microscopy and laser damage ” **conférence invitée** : Optilayer 2003, Institut Fresnel - Marseille 3-5 février 2003

#### **□ RAPPORT SCIENTIFIQUES (DISPONIBLES-NON CONFIDENTIEL)**

- Jean-Yves Natoli, Laurent Gallais, Claude Amra et Carole Deumie : Rapport de contrat Institut Fresnel (équipe MAP2) – DGA. Etude : « Méthode non destructive de détection des nano-centres précurseurs de l’endommagement laser » Marche n° 00.34 042.470.75.65.
- Claude Amra, M. Commandre, Jean Yves Natoli, Laurent Gallais, et Carole Deumie, Annelise During et Caroline Fossati : Rapport de contrat Institut Fresnel (équipe MAP2) - CEA CESTA. Etude : « Détection non destructive de défaut par LMS- Réalisation de tests statistiques d’endommagement- Cartographies d’absorption et de diffusion ». Contrat n° 0401MAP2319.
- Jean-Yves Natoli : Rapport bilan sur l’activité scientifique réalisée au LLNL (USA) dans le cadre d’un détachement de neuf mois pour justification de financement par l’organisme OTAN.
- Jean-Yves Natoli, Bertrand Bertussi et Mireille Commandre : Rapport de contrat Institut Fresnel (équipe MAP2) - CEA CESTA Etude : « Etude du conditionnement laser dans la silice à  $3\omega$  ».
- Jean-Yves Natoli, Laurent Gallais et Michella Perra : Rapport de contrat Institut Fresnel (équipe MAP2) - CEA Bruyère le Châtel « Etude d’échantillons test par AFM et Nomarski en

vue d'appréhender l'initiation de l'endommagement de la silice sous irradiation laser impulsionnelle » contrat n° 4600014995.

- M. Commandre, Jean Yves Natoli, Laurent Gallais, Annelise During et Caroline Fossati. : Rapport de contrat entre l'Institut Fresnel et le CEA/VALRHO, 2000. « Contamination et vieillissement de composants optiques ».

## **V. Responsabilités collectives**

- Membre de la commission de spécialiste 63<sup>eme</sup> section depuis 1997.
- Membre du conseil d'administration de l'ENSPM (1999-2001).
- Responsable du pôle électronique numérique à l'ENSPM depuis 1997.
- Gestion de plusieurs collaborations et contrats de recherches (cf.III).
- Participation à la création d'une plate-forme « Photonique de puissance » labellisé par POP SUD et soutenu par le Ministère, le CNRS la région et le département. (cf.II.3 )
- Responsable du service commun de microscopie à force atomique à l'Institut Fresnel.
- Membre du groupe de travail sur l'endommagement laser GETEL, regroupant divers partenaires du CEA et Universitaires.

## **VI. Activités scientifiques antérieures**

- **Thèse de doctorat (1991-1994)**

Effectuée au Centre de Recherche sur les Mécanismes de la Croissance Cristalline (CRMC2-Campus Luminy Marseille). Responsable : **Pr. J. Derrien**.

### **"Épitaxie par jets chimiques du silicium et du disiliciure de fer sur silicium".**

L'objet de mon travail de thèse a été l'élaboration et la caractérisation de couches de **silicium et de siliciure de fer sur silicium**, après avoir mis au point la technique **d'épitaxie par jets chimiques**.

#### **- Homoépitaxie du silicium**

La CVD (Chemical Vapor Deposition) couramment utilisée dans la préparation de circuits intégrés, ne permet pas, à cause des températures utilisées, de répondre à certains besoins concernant la réalisation de circuit à base de silicium à temps de réponse très court (transistors bipolaires à base très mince, transistors HBT). Leur réalisation nécessite en effet un contrôle précis de l'épaisseur, du profil de dopage et des interfaces.

L'utilisation de basses températures (<650°C) avec la technique d'épitaxie par jets chimiques en utilisant par exemple le disilane ( $\text{Si}_2\text{H}_6$ ) permet de remplir ce cahier des charges.

Dans cette étude, je me suis donc attaché à déterminer les conditions de dépôt et à caractériser les qualités des couches obtenues. Cette caractérisation a été réalisée in situ par diffraction d'électrons de haute énergie (RHEED), par spectroscopie de photons et d'électrons (XPS, UPS, AUGER), et ex situ par microscopie électronique à transmission (HRTEM), par diffraction X et microprofilométrie Auger.

- J'ai pu obtenir les conditions d'observation des oscillations d'intensité RHEED, et ainsi déterminer le régime de croissance. L'obtention des oscillations de RHEED permet également de contrôler à la monocouche près l'épaisseur déposée. L'obtention de ces oscillations atteste d'autre part de la qualité du dépôt obtenu.

- L'étude sur les variations de vitesse de croissance en fonction de la température et du flux de disilane, a conduit, grâce à la détermination de l'énergie d'activation de la croissance pour  $T <$



600°C, à la mise en évidence de l'action de l'hydrogène adsorbé en surface, sur les mécanismes de croissance.

- Le rôle prépondérant de l'état de surface initial a été mis en évidence. Il a en effet été possible d'une part de déterminer les conditions de croissance sélective sur SiO<sub>2</sub>, et d'autre part d'obtenir et d'expliquer les différences de vitesse de croissance entre les faces (111) et (100) du silicium. La sélectivité du dépôt présente un intérêt pour la réalisation de motifs sans passer par des étapes de photolithographie.

- Enfin j'ai pu mettre au point des conditions de dépôt conduisant à l'obtention de couches de qualité cristalline très satisfaisante pour des températures d'épitaxie relativement basses (<600°C).

### **- Hétéroépitaxie du disiliciure de fer ( $\beta$ -FeSi<sub>2</sub>)**

Un des défis dans la fabrication de composants, est de pouvoir réaliser en technologie silicium l'intégration de dispositifs optoélectroniques à base de silicium et de ses composés. L'émission et la détection de la lumière sont en effet des domaines réservés aux matériaux III/V et II/VI.

Le di-siliciure de fer dans la phase  $\beta$ -FeSi<sub>2</sub> se présente comme un bon candidat pour répondre à ce besoin. En effet il est semi-conducteur avec un gap de 0.85eV, ce qui donne une longueur d'onde qui correspond à une fenêtre de transmission optique de la silice (application aux fibres optiques).

- J'ai tout d'abord, montré la possibilité d'utiliser le pentacarbonyle de fer (Fe(CO)<sub>5</sub>), comme précurseur du fer. En effet ce précurseur s'est avéré d'une part compatible avec l'environnement ultravide, et d'autre part n'a induit aucune trace de contamination dans les dépôts.

- Après avoir réalisé l'élaboration de FeSi<sub>2</sub> à partir du fer seul, et démontré la limite de cette technique j'ai entrepris le co-dépôt stoechiométrique (Si<sub>2</sub>H<sub>6</sub>+Fe(CO)<sub>5</sub>). L'épitaxie, ainsi obtenue, a donné d'une manière systématique la phase métallique hors équilibre  $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>.

L'obtention de la phase semi-conductrice  $\beta$ - FeSi<sub>2</sub> a été possible après un recuit lent de la couche  $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub>. L'état électronique de ces phases a été déterminé par photoémission UV et X monochromatisée. La transformation de phase s'accompagne d'une coalescence spectaculaire des grains épitaxiés. L'interface est également remarquablement lissée par le recuit et devient parfaitement abrupte. La qualité et la taille des grains épitaxiés sont donc satisfaisantes pour une éventuelle application en technologie.

Des mesures d'absorption optique réalisées sur ces couches ont révélé un gap de 0.85 eV, conforme aux prévisions théoriques.

Outre l'ensemble de ces résultats, ce travail de thèse a apporté à l'équipe un certain savoir-faire avec la technique d'épitaxie par jets chimiques qui, par ailleurs, peut s'appliquer à d'autres types de matériaux.

- **Publications et communications liées à cette thématique**

- **Publications**

1. J.Derrien, I.Berbezier, A.Ronda and J.Y.Natoli, "Interface phase transition as observed in ultra thin FeSi<sub>2</sub> epilayers", **Applied Surface Science** **92** (1996) 311-320
2. J.Y.Natoli, I.Berbezier, A.Ronda and J.Derrien. "Chemical beam epitaxy of iron disilicide on silicon, **Journal of Crystal Growth** **146** (1995) 444-448.
3. J.Y.Natoli, I.Berbezier and J.Derrien, "Growth of  $\beta$ -FeSi<sub>2</sub> on Si(111) by chemical beam epitaxy", **Applied Physics Letters** **65** (1994) pp 1439-1441.
4. T.E.Crumbaker, J.Y.Natoli, I.Berbezier and J.Derrien, "Growth of  $\beta$ -FeSi<sub>2</sub> on silicon substrates by chemical beam epitaxy". **Journal of Crystal Growth** **127** (1993) 158-164
5. J. Derrien, J. Chevrier, V. Le Than, T.E. Crumbaker, J.Y. Natoli and I. Berbezier, "Silicide epilayers: recent development and prospect for a Si-compatible technology", **Applied Surface Science** **70/71** (1993) 546-558
6. J. Chevrier, J.Y. Natoli , I. Berbezier, A. Ronda and J. Derrien, " Semiconducting silicide-silicon heterostructures", **Solid State Phenomena** **32-33** (1993) pp 39-50
7. P. Stocker, J.M. Gay and J.Y. Natoli "Metastable  $\alpha$ -FeSi<sub>2</sub> grown on Si(111) at low Temperature", **Physica B**, compte rendus de la 3rd Int.conf.on Surface X-ray and Neutron Scattering, Dubna(1993).

- **Communications**

- 1/ BIADS International Conference Paris, 1991.
- 2/ VII th International Conference on Molecular Beam Epitaxy . Schwabish Gmund, Germany, 2428, August 1992.
- 3/ Conference IVC-12, ICSS-8-The Hague, octobre 1992
- 4/ 5 th International autumn meeting, Gadest'93 Frankfurt.
- 5/ 8 th International Conference on Vapour Growth and Epitaxy, Fribourg (July 1994).

## **VII. Publications choisis**